(19)日本国特許庁(JP)　(12)公表特許公報(A)　(11)公表番号
特表2024-546031
(P2024-546031A)
(43)公表日　令和6年12月17日(2024.12.17)

(51)国際特許分類		FI		テーマコード（参考）
C08B	*3/18 (2006.01)*	C08B	3/18	4C090
C08B	*3/16 (2006.01)*	C08B	3/16	4F070
C08J	*3/16 (2006.01)*	C08J	3/16 CEP	

審査請求　未請求　予備審査請求　未請求　（全38頁）

(21)出願番号　特願2024-527605(P2024-527605)
(86)(22)出願日　令和4年11月11日(2022.11.11)
(85)翻訳文提出日　令和6年7月9日(2024.7.9)
(86)国際出願番号　PCT/US2022/049642
(87)国際公開番号　WO2023/086529
(87)国際公開日　令和5年5月19日(2023.5.19)
(31)優先権主張番号　63/263,952
(32)優先日　令和3年11月12日(2021.11.12)
(33)優先権主張国・地域又は機関
米国(US)
(31)優先権主張番号　63/264,990
(32)優先日　令和3年12月6日(2021.12.6)
(33)優先権主張国・地域又は機関
米国(US)
(31)優先権主張番号　63/365,202
最終頁に続く

(71)出願人　594055158
イーストマン ケミカル カンパニー
アメリカ合衆国 ３７６６０ テネシー州 キングスポート ウイルコックス ドライブ サウス ２００
(74)代理人　100118902
弁理士　山本 修
(74)代理人　100106208
弁理士　宮前 徹
(74)代理人　100196508
弁理士　松尾 淳一
(74)代理人　100129311
弁理士　新井 規之
(72)発明者　ペイス，ロバート・デヴィッド
アメリカ合衆国テネシー州３７６４５，
最終頁に続く

(54)【発明の名称】　混合セルロースエステルから得られる生分解性マイクロビーズ

(57)【要約】
酢酸酪酸セルロースや酢酸プロピオン酸セルロースなどの混合セルロースエステルから形成される生分解性ビーズを提供する。生分解性ビーズと混合セルロースエステルは、いずれも淡水生分解性で、生分解性成分が望まれかつ求められる様々な川下の用途に使用することができる。

【特許請求の範囲】
【請求項１】
混合セルロースエステルを含む生分解性ビーズであって、
該生分解性ビーズは、ＯＥＣＤ　３０１Ｆ試験法に従って、５６日間で少なくとも４０％の生分解性を示し、
前記混合セルロースエステルは、
（ａ）アセチル置換基および２．３未満のアセチル置換基の平均置換度（DS_{Ac}）、
（ｂ）少なくとも０．１のプロピオニル置換基の平均置換度（DS_{Pr}）またはブチリル置換基の平均置換度（DS_{Bu}）、および
（ｃ）少なくとも０．６のヒドロキシル置換基の平均置換度（DS_{OH}）を有する、生分解性ビーズ。
【請求項２】
前記DS_{OH}は０．７から１．４の範囲である、請求項１に記載の生分解性ビーズ。
【請求項３】
前記DS_{Ac}は０．９から２．２の範囲である、請求項１および２のいずれか１項に記載の生分解性ビーズ。
【請求項４】
前記DS_{Pr}は０．１から０．９の範囲である、請求項１から３のいずれか１項に記載の生分解性ビーズ。
【請求項５】
前記DS_{Bu}は０．１から１．１の範囲である、請求項１から３のいずれか１項に記載の生分解性ビーズ。
【請求項６】
前記混合セルロースエステルは、ＯＥＣＤ　３０１Ｆ試験法に従って、５６日で少なくとも４５％の生分解性を示す、請求項１から５のいずれか１項に記載の生分解性ビーズ。
【請求項７】
前記混合セルロースエステルは、５，０００から１００，０００　Ｄａの範囲の重量平均分子量を有する、請求項１から６のいずれか１項に記載の生分解性ビーズ。
【請求項８】
前記生分解性ビーズは、
（ｉ）　１から４０ミクロンの直径、
（ｉｉ）　６０から１００％の範囲の真球度、
（ｉｉｉ）　０．１　m^2／ｇから１０　m^2／ｇの範囲の平均表面積、および
（ｉｖ）　０．２から０．７の範囲の嵩密度を有する、
請求項１から７のいずれか１項に記載の生分解性ビーズ。
【請求項９】
混合セルロースエステルおよび追加の生分解性セルロースエステルを含む生分解性ビーズであって、
該生分解性ビーズは、ＯＥＣＤ　３０１Ｆ試験法に従って、５６日間で少なくとも４０％の生分解性を示し、
前記混合セルロースエステルは、
（ａ）　アセチル置換基および２．３未満のアセチル置換基の平均置換度（DS_{Ac}）、
（ｂ）　少なくとも０．１のプロピオニル置換基の平均置換度（DS_{Pr}）またはブチリル置換基の平均置換度（DS_{Bu}）、および
（ｃ）　少なくとも０．６のヒドロキシル置換基の平均置換度（DS_{OH}）を有する、生分解性ビーズ。
【請求項１０】
前記DS_{OH}は０．７から１．４の範囲である、請求項９に記載の生分解性ビーズ。

【請求項１１】
前記ＤＳ$_{Ac}$は０．９から２．２の範囲である、請求項９から１０のいずれか１項に記載の生分解性ビーズ。
【請求項１２】
前記ＤＳ$_{Pr}$は０．１から０．９の範囲である、あるいは前記ＤＳ$_{Bu}$は０．１から１．１の範囲である、請求項９から１１のいずれか１項に記載の生分解性ビーズ。
【請求項１３】
前記混合セルロースエステルは、ＯＥＣＤ　３０１Ｆ試験法に従って、５６日で少なくとも４５％の生分解性を示す、請求項９から１２のいずれか１項に記載の生分解性ビーズ。
【請求項１４】
前記混合セルロースエステルは、５，０００から１００，０００　Ｄａの範囲の重量平均分子量を有する、請求項９から１３のいずれか１項に記載の生分解性ビーズ。
【請求項１５】
前記追加の生分解性セルロースエステルは、酢酸セルロースである、請求項９から１４のいずれか１項に記載の生分解性ビーズ。
【請求項１６】
該生分解性ビーズは、
（ｉ）　１から４０ミクロンの直径、
（ｉｉ）　６０から１００パーセントの範囲の真球度、
（ｉｉｉ）　０．１から１．１　m^2／ｇから１０　m^2／ｇの範囲の平均表面積、および
（ｉｖ）　０．２から０．７の範囲の嵩密度を有する、請求項９から１５のいずれか１項に記載の生分解性ビーズ。
【請求項１７】
生分解性ビーズを形成する方法であって、
（ａ）混合セルロースエステルを含むドープを形成する工程、
（ｂ）前記ドープの少なくとも一部を攪拌下で水性混合物と接触させて、複数の生分解性ビーズを含む反応混合物を形成する工程、および
（ｃ）前記反応混合物から前記生分解性ビーズの少なくとも一部を回収する工程を含み、
前記混合セルロースエステルは、
（ｉ）アセチル置換基および２．３未満のアセチル置換基の平均置換度（ＤＳ$_{Ac}$）、
（ｉｉ）少なくとも０．１のプロピオニル置換基の平均置換度（ＤＳ$_{Pr}$）またはブチリル置換基の平均置換度（ＤＳ$_{Bu}$）、および
（ｉｉｉ）少なくとも０．６のヒドロキシル置換基（ＤＳ$_{OH}$）の平均置換度を有し、
前記生分解性ビーズはＯＥＣＤ　３０１Ｆ試験法に従って５６日後に少なくとも４０％の生分解性を示す、生分解性ビーズを形成する方法。
【請求項１８】
前記ドープはアルカノールを含む、請求項１７に記載の方法。
【請求項１９】
前記ドープは酢酸アルキルを含む、請求項１７から１８のいずれか１項に記載の方法。
【請求項２０】
前記水性混合物は、酢酸アルキルおよび／またはメチルセルロースを含む、請求項１７から１９のいずれか１項に記載の方法。
【発明の詳細な説明】
【背景技術】
【０００１】

自然環境では、従来の非生分解性プラスチックは機械的に分解され、マイクロプラスチックと呼ばれる小さなプラスチック片として環境中に残留する。健康・美容製品に使われるマイクロビーズなどの使い捨てプラスチックや、洗濯の際に出る糸くずの超極細繊維も、マイクロプラスチックの他の発生源である。これらのマイクロプラスチックは、その大きさゆえに自然の水域に流れ着く。マイクロプラスチックの発生を減らすには、淡水で生分解しうるプラスチックを使用することが望ましい。

【発明の概要】

【０００２】

本出願は、混合セルロースエステルを含む生分解性ビーズを開示する。一般に、この生分解性ビーズは、ＯＥＣＤ　３０１Ｆ試験法に従って、５６日で少なくとも４０％の生分解性を示す。さらに、この混合セルロースエステルは、（ａ）アセチル置換基および２．３未満のアセチル置換基の平均置換度（DS_{Ac}）、（ｂ）少なくとも０．１のプロピオニル置換基の平均置換度（DS_{Pr}）またはブチリル置換基の平均置換度（DS_{Bu}）、および（ｃ）平均置換度（DS_{OH}）が少なくとも０．６のヒドロキシル置換基を含む。

【０００３】

本出願はまた、混合セルロースエステルと追加の生分解性セルロースエステルを含む生分解性ビーズを開示する。一般に、この生分解性ビーズは、ＯＥＣＤ　３０１Ｆ試験法に従って、５６日間で少なくとも４０％の生分解性を示す。さらに、この混合セルロースエステルは、（ａ）アセチル置換基および２．３未満のアセチル置換基の平均置換度（DS_{Ac}）、（ｂ）少なくとも０．１のプロピオニル置換基の平均置換度（DS_{Pr}）またはブチリル置換基の平均置換度（DS_{Bu}）、および（ｃ）平均置換度（DS_{OH}）が少なくとも０．６のヒドロキシル置換基を含む。

【０００４】

本出願はまた、生分解性ビーズを形成する方法も開示する。一般に、この方法は、（ａ）混合セルロースエステルを含むドープを形成する工程；（ｂ）前記ドープの少なくとも一部を攪拌下で水性混合物と接触させ、それにより複数個の生分解性ビーズを含む反応混合物を形成する工程；および（ｃ）前記反応混合物から前記生分解性ビーズの少なくとも一部を回収する工程を含む。この生分解性ビーズは、ＯＥＣＤ　３０１Ｆ試験法に従って、５６日間で少なくとも４０％の生分解性を示す。さらに、この混合セルロースエステルは、（ａ）アセチル置換基および２．３未満のアセチル置換基の平均置換度（DS_{Ac}）、（ｂ）少なくとも０．１のプロピオニル置換基の平均置換度（DS_{Pr}）またはブチリル置換基の平均置換度（DS_{Bu}）、および（ｃ）平均置換度（DS_{OH}）が少なくとも０．６のヒドロキシル置換基を含む。

【０００５】

本出願はまた、混合セルロースエステル（ＭＣＥ）を開示する。この混合セルロースエステルは、

（１）複数のアセチル置換基；

（２）複数のプロピオニル置換基；および

（３）複数のヒドロキシル置換基を含み、

前記ＣＥのアセチル置換基の置換度（DS_{Ac}）は０．６から１．９であり、

前記ＣＥのプロピオニル置換基の置換度（DS_{Pr}）は０．５から０．９５であり、かつ

前記ＣＥのヒドロキシル置換基の置換度（DS_{OH}）は０．７から１．４である。

【０００６】

本出願はまた、混合セルロースエステル（ＭＣＥ）を開示する。この混合セルロースエステルは、

（１）複数のアセチル置換基；

（２）複数のプロピオニル置換基；および

（３）複数のヒドロキシル置換基を含み、

前記ＭＣＥのアセチル置換基の平均置換度（DS_{Ac}）は０．６から１．２であり、

前記ＭＣＥのプロピオニル置換基の平均置換度（ＤＳ$_{Pr}$）は１．０５から１．４であり、かつ
前記ＭＣＥのヒドロキシル置換基の平均置換度（ＤＳ$_{OH}$）は０．７から１．４である。
【０００７】
本出願はまた、混合セルロースエステル（ＭＣＥ）を開示する。この混合セルロースエステルは、
（１）複数のアセチル置換基；
（２）複数のブチリル置換基；および
（３）複数のヒドロキシル置換基を含み、
前記ＭＣＥのアセチル置換基の平均置換度（ＤＳ$_{Ac}$）は０．９から２．４であり、
前記ＭＣＥのブチリル置換基の平均置換度（ＤＳ$_{Bu}$）は０．１から１．１であり、かつ
前記ＭＣＥのヒドロキシル置換基の平均置換度は０．６から１．５である。
【０００８】
本出願はまた、本明細書に開示された混合エステル組成物から製造された組成物、物品、ビーズ、ビーズ組成物およびフィルムも開示する。
【０００９】
本出願はまた、セルロースエステル組成物から形成されるセルロースエステル粒子を開示する。この組成物は
（Ｉ）混合セルロースエステル（ＭＣＥ）；および
（ＩＩ）セルロースアセテート（ＣＡ）を含み、
前記混合セルロースエステル（ＭＣＥ）は
（１）複数のアセチル置換基；
（２）複数の（Ｃ$_{2-3}$）アルキル－ＣＯ－置換基；および
（３）複数のヒドロキシル置換基を含み、
前記ＭＣＥのアセチル置換基の平均置換度（ＤＳ$_{Ac}$）は０．６から２．４であり、
前記ＭＣＥの（Ｃ$_{2-3}$）アルキル－ＣＯ－置換基（ＤＳ$_{AkCO}$）の平均置換度は０．１から１．１であり、
前記ＭＣＥのヒドロキシル置換基（ＤＳ$_{OH}$）の平均置換度は０．５５から１．５であり、
前記セルロースアセテート（ＣＡ）は
（１）複数のアセチル置換基；および
（２）複数のヒドロキシル置換基
を有し、
前記ＣＡのアセチル置換基の平均置換度（ＤＳ$_{Ac}$）は１．５から２．６であり、
前記ＣＡのヒドロキシル置換基（ＤＳ$_{OH}$）の平均置換度は０．４から１．５である。
【００１０】
本出願はまた、ドープ組成物を開示する。このドープ組成物は
（Ａ）セルロースエステル組成物、および
（Ｂ）溶媒を含み、
前記セルロースエステル組成物は、
（Ｉ）混合セルロースエステル（ＭＣＥ）および、
（ＩＩ）セルロースアセテート（ＣＡ）を含み、
前記混合セルロースエステル（ＭＣＥ）は、
（１）複数のアセチル置換基、
（２）複数の（Ｃ$_{2-3}$）アルキル－ＣＯ－置換基、および
（３）複数のヒドロキシル置換基を含み、
前記ＭＣＥのアセチル置換基の平均置換度（ＤＳ$_{Ac}$）は０．６から２．４であり、

前記ＭＣＥの（Ｃ$_{2-3}$）アルキル－ＣＯ－置換基（ＤＳ$_{AkCO}$）の平均置換度は０．１から１．１であり
前記ＭＣＥのヒドロキシル置換基（ＤＳ$_{OH}$）の平均置換度は０．５５から１．５であり、
前記セルロースアセテート（ＣＡ）は、
（１）複数のアセチル置換基；および
（２）複数のヒドロキシル置換基を含み、
前記ＣＡのアセチル置換基の平均置換度（ＤＳ$_{Ac}$）は１．５から２．６であり、
前記ＣＡのヒドロキシル置換基（ＤＳ$_{OH}$）の平均置換度は０．４から１．５であり、
前記溶媒は、
（１）水
（２）酢酸（Ｃ$_{1-2}$）アルキル、および
（３）（Ｃ$_{1-5}$）アルカノールを含み、
該ドープ組成物は、３０００から９０００　ｃＰの範囲の粘度を示す。

【発明の詳細な説明】

【００１１】

本開示は、淡水域で生分解するために、酪酸アセチル／プロピオニルの適切な混合、および適切なヒドロキシル含量で設計された酢酸酪酸セルロースおよび酢酸プロピオン酸セルロース重合体に向けられている。本明細書に開示された混合セルロースエステル類は、フィルム、マイクロビーズ、その他の成形品の調製に有用である。

【００１２】

本発明は、以下の発明の詳細な説明およびそこに記載された実施例を参照することで、より理解を深めることができる。当然だが、本発明は、記載された特定の方法、配合物および条件に限定されない。さらに、本明細書で使用される用語は、本発明の特定の態様を説明するためのものであり、限定を意図するものではない。

【００１３】

各値は、所定の数値の「約」または「おおよそ」として表すことができる。同様に、本明細書では、ある特定の値の「約」から、および／または他の特定の値の「約」までの範囲として表現される場合がある。このような範囲が表現される場合、別の側面では、ある特定の値から、および／または他の特定の値までが含まれる。同様に、値が近似値として表現される場合、当然に先行詞「約」の使用により、特定の値が別の側面を形成する。

【００１４】

本明細書において、「ａ」、「ａｎ」および「ｔｈｅ」という用語は、１つ（１種）以上を意味する。

【００１５】

本明細書で使用される場合、用語「および／または」は、２項目つ以上のリストで使用される場合、複数の記載項目のいずれか一項目が単独で採用されるか、またはこれらの記載項目の２つ以上の任意の組み合わせが採用され得ることを意味する。例えば、組成物が成分Ａ、Ｂ、および／またはＣを含むと記載されている場合、組成物は、Ａ単独；Ｂ単独；Ｃ単独；ＡおよびＢの組み合わせ；ＡおよびＣの組み合わせ、ＢおよびＣの組み合わせ；またはＡ、Ｂ、およびＣの組み合わせを含むことができる。

【００１６】

本明細書で使用される場合、用語「含む」、「含み」、および「含まれる」は、用語の前に記載された主題から用語の後に記載された１つ（１種）以上の要素に移行するのに使用される非制限の移行用語であり、移行用語の後に記載された要素または各要素は、主題を構成する唯一の要素とは限らない。

【００１７】

本明細書で使用される場合、「有する」、「有し」、および「持つ」という用語は、上に述べた「含む」、「含み」、および「含まれる」と同じ非制限的な意味を有する。

【００１８】
本明細書で使用される場合、用語「包含する」および「包含し」は、上記で提供される「含む」、「含み」、および「含まれる」と同じ非制限的な意味を有する。
【００１９】
本明細書において、「混合セルロースエステル」は、単一のセルロースエステル重合体鎖に少なくとも２つの異なるエステル置換基を有するセルロースエステルを示すものとする。
【００２０】
「置換度」は、無水グルコース単位（ＡＧＵ）あたりの置換基の平均置換度を表すのに使用される。一般に、従来のセルロースは各ＡＧＵに３個の置換可能なヒドロキシル基を有している。したがって、ＤＳは０から３の間の値を持つことができる。しかしながら、低分子量セルロース混合エステルは、末端基の寄与により総置換度が３をわずかに超えることがある。低分子量セルロース混合エステルについては、本開示で後に詳しく説明する。ＤＳは統計的な平均値のため、値が１であっても、すべてのＡＧＵが単一の置換基を有することを保証するものではない。場合によっては、無置換の無水グルコース単位が存在することもあり、２個の置換基を有するものもあれば３個の置換基を有するものもあり、値が整数でないことの方が多い。総ＤＳは、無水グルコース単位あたりの全置換基の平均数として定義される。ＡＧＵあたりの置換度は、例えば、ヒドロキシル、アセチル、ブチリル、プロピオニルなどの特定の置換基を指すこともある。さらに、置換度は、無水グルコース単位の炭素単位に基づいて所定のヒドロキシルを指定することができる。
【００２１】
置換度がヒドロキシル、すなわちDS_{OH}を指す場合、置換されていない無水グルコースあたりの平均ヒドロキシル基のことである。その結果、DS_{OH}は総置換度の計算には使用されない。
【００２２】
数値範囲
本明細書では、本発明に関連する特定のパラメータを定量するのに数値範囲を使用する。当然だが、数値範囲が提供される場合、このような範囲は、範囲の下限値のみを記載する請求項の限定、及び範囲の上限値のみを記載する請求項の限定の文字通りの裏付けを提供するものと解釈される。例えば、開示された１０から１００の数値範囲は、「１０より大きい」（上限なし）と記載された請求項及び「１００より小さい」（下限なし）と記載された請求項に対する文字通りの裏付けを提供する。
【００２３】
本明細書では、本発明に関連する特定のパラメータを定量するのに特定の数値を使用しているが、これらの特定の数値は数値範囲の一部であることを明示するものではない。当然だが、本明細書で提供される各特定数値は、広い範囲、中間範囲、および狭い範囲を文字どおり支持するものと解釈される。各具体的な数値に関連する広い範囲とは、数値のプラスマイナス６０パーセントを有効数字２桁で四捨五入したものである。各特定数値に関連する中間範囲は、数値のプラスマイナス３０％で、有効数字２桁で四捨五入される。各数値に関連する狭い範囲は、数値のプラスマイナス１５％で、有効数字２桁で四捨五入される。例えば、明細書に６２°Ｆという特定の温度が記載されている場合、このような記載は、２５°Ｆから９９°Ｆ（６２°Ｆ±３７°Ｆ）という広い数値範囲、４３°Ｆから８１°Ｆ（６２°Ｆ±１９°Ｆ）という中間の数値範囲、および５３°Ｆから７１°Ｆ（６２°Ｆ±９°Ｆ）という狭い数値範囲を文字どおり裏付けるものとなる。これらの広い、中間、および狭い数値範囲は、特定の値に適用されるだけでなく、これら特定の値の間の差にも適用されるべきである。したがって、明細書に１１０　ｐｓｉａの第１の圧力と４８　ｐｓｉａの第２の圧力（６２　ｐｓｉの差）が記載されている場合、これら２つの流れの間の圧力差の広い、中間、および狭い数値範囲は、それぞれ２５から９９　ｐｓｉ、４３から８１　ｐｓｉ、および５３から７１　ｐｓｉである。
【００２４】

本出願全体を通じて、特許または刊行物が参照される場合、これらの文献の開示全体は、本発明が関連する技術状態をより完全に記載するために、本発明と矛盾しない範囲で、参照により本出願に組み込まれることが意図される。

【００２５】

混合セルロースエステル

一般に、セルロースエステルは、当該技術分野で公知の任意の方法で製造することができる。セルロースエステルを製造する方法は例えば、Ｋｉｒｋ－Ｏｔｈｍｅｒ，Ｅｎｃｙｃｌｏｐｅｄｉａ ｏｆ Ｃｈｅｍｉｃａｌ Ｔｅｃｈｎｏｌｏｇｙ，５ｔｈ Ｅｄｉｔｉｏｎ，Ｖｏｌ．５，Ｗｉｌｅｙ－Ｉｎｔｅｒｓｃｉｅｎｃｅ，Ｎｅｗ Ｙｏｒｋ（２００４），ｐｐ．３９４－４４４に教示されており、その開示は参照によりその全体が組み込まれる。セルロースエステル製造の出発物質であるセルロースは、異なる等級、例えば、綿花リンター、針葉樹パルプ、広葉樹パルプ、トウモロコシ繊維および他の農業源、ならびに細菌セルロースなどの供給源から得ることができる。

【００２６】

セルロースエステルを製造する方法のひとつは、エステル化によるものである。このような方法では、セルロースを適切な有機酸、酸無水物および触媒と混合し、次いでセルローストリエステルに変換する。エステル加水分解は、水と酸の混合物をセルローストリエステルに加えて行われ、濾過してゲル粒子や繊維を取り除くことができる。混合物に水を加えてセルロースエステルを沈殿させる。その後、セルロースエステルを水で洗浄して反応副生成物を除去し、脱水・乾燥する。

【００２７】

本明細書での使用に適したアシル化試薬としては、本明細書に記載の置換セルロースエステルのアシル置換基での使用に適した上記のアルキル基またはアリール基を含むアルキルまたはアリールカルボン酸無水物、カルボン酸ハロゲン化物、および／またはカルボン酸エステルを挙げることができるが、これらに限定されない。好適なカルボン酸無水物の例としては、無水酢酸、無水プロピオン酸、無水酪酸、無水ピバロイル、無水安息香酸、および無水ナフトイルが挙げられるが、これらに限定されない。カルボン酸ハロゲン化物の例としては、アセチル、プロピオニル、ブチリル、ピバロイル、ベンゾイル、およびナフトイルの塩化物または臭化物が挙げられるが、これらに限定されない。カルボン酸エステルの例としては、アセチル、プロピオニル、ブチリル、ピバロイル、ベンゾイル、およびナフトイルのメチルエステルが挙げられるが、これらに限定されない。１つ以上の実施形態において、アシル化試薬は、無水酢酸、無水プロピオン酸、無水酪酸、無水ピバロイル、無水ベンゾイル、および無水ナフトイルからなる群より選択される１種以上のカルボン酸無水物であり得る。

【００２８】

様々な実施形態において、加水分解されるセルローストリエステルは、２から１２個の炭素原子を有するアルカノイルから独立して選択される３つの置換基を有することができる。セルローストリエステルの例としては、三酢酸セルロース、三プロピオン酸セルロース、三酪酸セルロース、または酢酸プロピオン酸セルロースおよび酢酸酪酸セルロースのようなセルロースの混合トリエステルが挙げられる。これらのセルローストリエステルは、当業者に公知の多くの方法によって調製することができる。例えば、セルローストリエステルは、H_2SO_4などの触媒の存在下、カルボン酸と無水物の混合物中でセルロースを不均一アシル化することによって調製することができる。セルローストリエステルは、ＬｉＣｌ／ＤＭＡｃやＬｉＣｌ／ＮＭＰなどの適切な溶媒に溶解したセルロースの均一アシル化によっても調製できる。

【００２９】

セルロースをトリエステルにエステル化した後、アシル置換基の一部を加水分解またはアルコール分解により除去し、二級セルロースエステルを得ることができる。二級セルロースエステルは、制限量のアシル化試薬を使用して、加水分解を行わずに直接調製することもできる。この方法は、セルロースを溶解する溶媒中で反応を行う場合に特に有用である

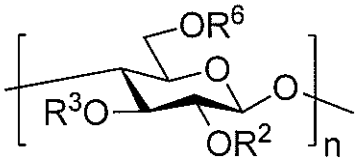
。

【００３０】

このようにして調製されたセルロースエステルは、一般に以下の構造を含む：

【００３１】

【化１】



【００３２】

式中、R^2、R^3およびR^6は水素（ただし、R^2、R^3およびR^6が同時に水素ではない）、アルキル－アシル基、および／またはアリール－アシル基（上記のものなど）であり、エステル結合によりセルロースに結合している。

【００３３】

これらの方法によって調製されるセルロースエステルの重合度（ＤＰ）は、少なくとも１０であり得る。他の実施形態において、セルロースエステルのＤＰは、少なくとも５０、少なくとも１００、または少なくとも２５０であり得る。他の実施形態において、セルロースエステルのＤＰは、約５から約１００の範囲内、または約１０から約５０の範囲内であり得る。本明細書で使用される場合、セルロースエステルに言及する場合の用語「重合度」は、セルロース重合体鎖あたりの無水グルコースモノマー単位の平均数を示すものとする。

【００３４】

一実施形態において、または他の実施形態との組み合わせにおいて、セルロースエステルは、少なくとも１１０、少なくとも１２０、少なくとも１３０、少なくとも１４０、少なくとも１５０、少なくとも１６０、少なくとも１７０、少なくとも１８０、少なくとも１９０、少なくとも２００、少なくとも２１０、少なくとも２２０、少なくとも２３０、少なくとも２４０、および／または３５０まで、３２５まで、または３００までのＤＰを有し得る。

【００３５】

本出願は、第一の側面において、混合セルロースエステル（ＭＣＥ）を開示し、この混合セルロースエステルは：（１）複数のアセチル置換基；（２）複数のプロピオニル置換基；および（３）複数のヒドロキシル置換基を含み、前記ＭＣＥのアセチル置換基の平均置換度（DS_{Ac}）は０．６から２．３であり、前記ＭＣＥのプロピオニル置換基の平均置換度（DS_{Pr}）は０．１から０．９５であり、前記ＭＣＥのヒドロキシル置換基の平均置換度（DS_{OH}）は０．５から１．５である。

【００３６】

一実施形態において、またはこの第１の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、DS_{Ac}は、０．６から２．２、または０．６から２．１、または０．６から２．０、または０．６から１．９、または０．６から１．８、または０．７から２．３、または０．７から２．２、または０．７から２．１、または０．７から２．０、または０．７から１．９、または０．８から２．３、または０．８から２．２、または０．８から２．１、または０．８から２．０、または０．８から１．９、または０．９から２．３、または０．９から２．２、または０．９から２．１、または０．９から２．０、または０．９から１．９、または１．０から２．３、または１．０から２．２、または１．０から２．１、または１．０から２．０、または１．０から１．９、または１．１から２．３、または１．１から２．２、または１．１から２．１、または１．１から２．０、または１．１から１．９、または１．２から２．３、または１．２から２．２、または１．２から２．１、または１．２から２．０、または１．２から１．９、または０．６から１

．５、または０．６から１．３、または０．６から１．１、または０．６から０．９、または０．７から１．５、または０．７から１．３、または０．７から１．１、または０．７から０．９である。

【００３７】

一実施形態において、またはこの第１の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、ＤＳ$_{Pr}$は、０．１から０．９、または０．１から０．８５、または０．１から０．８、または０．１から０．７５、または０．１から０．７、または０．１から０．６、または０．１から０．５、または０．１から０．４、または０．１５から０．９５、または０．１５から０．９、または０．１５から０．８５、または０．１５から０．８、または０．１５から０．７５、または０．１５から０．７、または０．１５から０．６５、または０．２から０．９５、または０．２から０．９、または０．２から０．８５、または０．２から０．８、または０．２から０．７５、または０．２から０．７、または０．２から０．６５、０．２５から０．９５、または０．２５から０．９、または０．２５から０．８５、または０．２５から０．８、または０．２５から０．７５、または０．２５から０．７、または０．２５から０．６５、または０．３から０．９５、または０．３から０．９、または０．３から０．８５、または０．３から０．８、または０．３から０．７５、または０．３から０．７、または０．３から０．６５、または０．３５から０．９５、または０．３５から０．９、または０．３５から０．８５、または０．３５から０．８、または０．３５から０．７５、または０．３５から０．７、または０．３５から０．６５、または０．４から０．９５、または０．４から０．９、または０．４から０．８５、または０．４から０．８、または０．４から０．７５、または０．４から０．７、または０．４から０．６５、または０．４５から０．９５、または０．４５から０．９、または０．４５から０．８５、または０．４５から０．８、または０．４５から０．７５、または０．４５から０．７、または０．４５から０．６５、または０．５から０．９５、または０．５から０．９、または０．５から０．８５、または０．５から０．８、または０．５から０．７５、または０．５から０．７、または０．５から０．６５、または０．１から０．９、または０．１から０．８５、または０．１から０．８である。

【００３８】

一実施形態において、またはこの第１の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、ＤＳ$_{OH}$は、０．５から１．５、または０．５から１．４５、または０．５から１．４０、または０．５から１．３５、または０．５から１．３０、または０．５から１．２５、または０．５から１．２、または０．５から１．１５、または０．５から１．１、または０．５から１．０５、または０．５から１．０、または０．５から０．９５、または０．５から０．９、または０．５５から１．５、または０．５５から１．４５、または０．５５から１．４０、または０．５５から１．３５、または０．５５から１．３０、または０．５５から１．２５、または０．５５から１．２、または０．５５から１．１５、または０．５５から１．１、または０．５５から１．０５、または０．５５から１．０、または０．５５から０．９５、または０．５５から０．９、または０．６から１．５、または０．６から１．４５、または０．６から１．４０、または０．６から１．３５、または０．６から１．３０、または０．６から１．２５、または０．６から１．２、または０．６から１．１５、または０．６から１．１、または０．６から１．０５、または０．６から１．０、または０．６から０．９５、または０．６から０．９、または０．６５から１．５、または０．６５から１．４５、または０．６５から１．４０、または０．６５から１．３５、または０．６５から１．３０、または０．６５から１．２５、または０．６５から１．２、または０．６５から１．１５、または０．６５から１．１、または０．６５から１．０５、または０．６５から１．０、または０．６５から０．９５、または０．６５から０．９、または０．７から１．５、または０．７から１．４５、または０．７から１．４０、または０．７から１．３５、または０．７から１．３０、または０．７から１．２５、または０．７から１．２、または０．７から１．１５、または０．７から１．１、または０．７から１．０５、または０．７から１．０、または０．７から

０．９５、または０．７から０．９である。
【００３９】
一実施形態において、またはこの第１の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、ＤＳ$_{Pr}$およびＤＳ$_{Ac}$の合計が、１．９から２．４４、または１．９から２．０、または１．９から２．１、または１．９から２．２、または１．９から２．３、または２．０から２．４４、または２．０から２．１、または２．０から２．２、または２．０から２．３、または２．１から２．４４、または２．１から２．２、または２．１から２．３、または２．２から２．４４、または２．２から２．３である。
【００４０】
一実施形態において、またはこの第１の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、ＭＣＥはＯＥＣＤ　３０１Ｆ試験法に従って、５６日後に少なくとも４０％の生分解性、または少なくとも４５％の生分解性、または少なくとも５０％の生分解性、または少なくとも５５％の生分解性、または少なくとも６０％の生分解性、または少なくとも６５％の生分解性、または少なくとも７０％の生分解性、または少なくとも７５％の生分解性、または少なくとも８０％の生分解性、または少なくとも８５％の生分解性を示す。
【００４１】
一実施形態において、またはこの第１の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、ＭＣＥは、５，０００から１００，０００　Ｄａ、または５，０００から５０，０００　Ｄａ、または５，０００から２５，０００　Ｄａ、または１５，０００から１００，０００　Ｄａ、または１５，０００から５０，０００　Ｄａ、または１５，０００から２５，０００　Ｄａ、または５０，０００から１００，０００　Ｄａ、または７５，０００から１００，０００　Ｄａ、または１５，０００から２５０，０００　Ｄａの範囲の重量平均分子量を有する。
【００４２】
本出願は、第二の側面において、（１）複数のアセチル置換基；（２）複数のプロピオニル置換基；および（３）複数のヒドロキシル置換基を含む、混合セルロースエステル（ＭＣＥ）を開示し、このＭＣＥのアセチル置換基の平均置換度（ＤＳ$_{Ac}$）は０．６から１．２であり、このＭＣＥのプロピオニル置換基の平均置換度（ＤＳ$_{Pr}$）は１．０５から１．４であり、このＭＣＥのヒドロキシル置換基の平均置換度（ＤＳ$_{OH}$）は０．７から１．４である。
【００４３】
一実施形態において、またはこの第２の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、ＤＳ$_{Ac}$は、０．６から０．７、または０．６から０．８、または０．６から０．９、または０．６から１．０、または０．６から１．１、または０．７から０．９、または０．７から１．０、または０．７から１．１、または０．７から１．２、または０．８から０．９、または０．８から１．０、または０．８から１．１、または０．８から１．２、または０．９から１．０、または０．９から１．１、または０．９から１．２、または１．０から１．１、または１．０から１．２、または１．１から１．２である。
【００４４】
一実施形態において、またはこの第２の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、ＤＳ$_{Pr}$は、１．０５から１．３５、または１．０５から１．３、または１．０５から１．２５、または１．０５から１．２、または１．０５から１．１５、または１．０５から１．１、または１．１から１．４、または１．１から１．３５、または１．１から１．３、または１．１から１．２５、または１．１から１．２、または１．１から１．１５、または１．１５から１．４、または１．１５から１．３５、または１．１５から１．３、または１．１５から１．２５、または１．１５から１．２、または１．２から１．４、または１．２から１．３５、または１．２から１．３、または１．２から１．２５、または１．２５から１．４、または１．２５から１．３５、または１．２５から

１．３、または１．３から１．４、または１．３から１．３５である。
【００４５】
一実施形態において、またはこの第２の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、DS_{OH}は、０．７から１．３５、または０．７から１．３、または０．７から１．２５、または０．７から１．２、または０．７から１．１５、または０．７から１．１、または０．７から１．０５、または０．７から１．０、または０．７から０．９５、または０．７から０．９、または０．７から０．８５、または０．７から０．８、または０．７から０．７５、または０．７５から１．４、または０．７５から１．３５、または０．７５から１．３、または０．７５から１．２５、または０．７５から１．２、または０．７５から１．１５、または０．７５から１．１、または０．７５から１．０５、または０．７５から１．０、または０．７５から０．９５、または０．８から１．４、または０．８から１．３５、または０．８から１．３、または０．８から１．２５、または０．８から１．２、または０．８から１．１５、または０．８から１．１、または０．８から１．０５、または０．８５から１．４、または０．８５から１．３５、または０．８５から１．３、または０．８５から１．２５、または０．８５から１．２、または０．８５から１．１５、または０．８５から１．１、または０．８５から１．０５、または０．９から１．４、または０．９から１．３５、または０．９から１．３、または０．９から１．２５、または０．９から１．２、または０．９から１．１５、または０．９から１．１、または０．９から１．０５である。
【００４６】
一実施形態において、またはこの第２の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、DS_{Pr}およびDS_{Ac}の合計は、１．６５から２．３、または１．６５から２．２、または１．６５から２．１、または１．６５から２．０、または１．６５から１．９、または１．６５から１．８、または１．７から２．３、または１．７から２．２、または１．７から２．１、または１．７から２．０、または１．７から１．９、または１．７から１．８、または１．７５から２．３、または１．７５から２．２、または１．７５から２．１、または１．７５から２．０、または１．７５から１．９、または１．８から２．３、または１．８から２．２、または１．８から２．１、または１．８から２．０、または１．８から１．９、または１．９から２．３、または１．９から２．２、または１．９から２．１、または１．９から２．０、または２．０から２．３、または２．０から２．２、または２．０から２．１である。
【００４７】
一実施形態において、またはこの第２の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、DS_{OH}は、０．６から０．７、または０．７から１．３５、または０．７から１．３、または０．７から１．２５、または０．７から１．２、または０．７から１．１５、または０．７から１．１、または０．７から１．０５、または０．７から１．０、または０．７から０．９５、または０．７から０．９、または０．７から０．８５、または０．７から０．８、または０．７から０．７５、または０．７５から１．４、または０．７５から１．３５、または０．７５から１．３、または０．７５から１．２５、または０．７５から１．２、または０．７５から１．１５、または０．７５から１．１、または０．７５から１．０５、または０．７５から１．０、または０．７５から０．９５、または０．８から１．４、または０．８から１．３５、または０．８から１．３、または０．８から１．２５、または０．８から１．２、または０．８から１．１５、または０．８から１．１、または０．８から１．０５、または０．８５から１．４、または０．８５から１．３５、または０．８５から１．３、または０．８５から１．２５、または０．８５から１．２、または０．８５から１．１５、または０．８５から１．１、または０．８５から１．０５、または０．９から１．４、または０．９から１．３５、または０．９から１．３、または０．９から１．２５、または０．９から１．２、または０．９から１．１５、または０．９から１．１、または０．９から１．０５である。
【００４８】

一実施形態において、またはこの第２の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、ＭＣＥは、ＯＥＣＤ　３０１Ｆ試験法に従って、５６日後に少なくとも４０％の生分解性、少なくとも４５％の生分解性、または少なくとも５０％の生分解性、または少なくとも５５％の生分解性、または少なくとも６０％の生分解性、または少なくとも６５％の生分解性、または少なくとも７０％の生分解性、または少なくとも７５％の生分解性、または少なくとも８０％の生分解性、または少なくとも８５％の生分解性を示す。

【００４９】

一実施形態において、またはこの第２の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、ＭＣＥは、５，０００から１００，０００　Ｄａ、または５，０００から５０，０００　Ｄａ、または５，０００から２５，０００　Ｄａ、または１５，０００から１００，０００　Ｄａ、または１５，０００から５０，０００　Ｄａ、または１５，０００から２５，０００　Ｄａ、または５０，０００から１００，０００　Ｄａ、または７５，０００から１００，０００　Ｄａ、または１５，０００から２５０，０００　Ｄａの範囲の重量平均分子量を有する。

【００５０】

本出願は、第３の側面において、混合セルロースエステル（ＭＣＥ）も開示し、このエステルは、（１）複数のアセチル置換基、（２）複数のブチリル置換基、および（３）複数のヒドロキシル置換基を含み、このＭＣＥのアセチル置換基の平均置換度（DS_{Ac}）は０．９から２．４であり、このＭＣＥのブチリル置換基（DS_{Bu}）の平均置換度は０．１から１．１であり、このＭＣＥのヒドロキシル置換基（DS_{OH}）の平均置換度は０．６から１．５である。

【００５１】

一実施形態において、またはこの第３の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、DS_{Ac}は、０．９から２．４、または０．９から２．３、または０．９から２．２、または０．９から２．１、または０．９から２．０、または０．９から１．９、または０．９から１．８、または０．９から１．７、または０．９から１．６、または０．９から１．４、または０．９から１．３、または０．９から１．２、または０．９から１．１、または０．９から１．０、または０．９２から２．４、または０．９２から２．３、または０．９２から２．２、または０．９２から２．１、または０．９２から２．０、または０．９２から１．９、または０．９２から１．８、または０．９２から１．７、または０．９２から１．６、または０．９２から１．４、または０．９２から１．３、または０．９２から１．２、または０．９２から１．１、または０．９２から１．０、または０．９４から２．４、または０．９４から２．３、または０．９４から２．２、または０．９４から２．１、または０．９４から２．０、または０．９４から１．９、または０．９４から１．８、または０．９４から１．７、または０．９４から１．６、または０．９４から１．４、または０．９４から１．３、または０．９４から１．２、または０．９４から１．１、または０．９４から１．０、または０．９６から２．４、または０．９６から２．３、または０．９６から２．２、または０．９６から２．１、または０．９６から２．０、または０．９６から１．９、または０．９６から１．８、または０．９６から１．７、または０．９６から１．６、または０．９６から１．４、または０．９６から１．３、または０．９６から１．２、または０．９６から１．１、０．９６から１．０または０．９８から２．４、または０．９８から２．３、または０．９８から２．２、または０．９８から２．１、または０．９８から２．０、または０．９８から１．９、または０．９８から１．８、または０．９８から１．７、または０．９８から１．６、または０．９８から１．４、または０．９８から１．３、または０．９８から１．２、または０．９８から１．１、または０．９８から１．０、または１．０から２．４、または１．０から２．３、または１．０から２．２、または１．０から２．１、または１．０から２．０、または１．０から１．８、または１．０から１．７、または１．０から１．６、または１．０から１．４、または１．０から１．３、または１．０から１．２、または１．

０から１．１、または１．１から２．４、または１．１から２．３、または１．１から２．２、または１．１から２．１、または１．１から２．０、または１．１から１．９、または１．１から１．８、または１．１から１．７、または１．１から１．６、または１．１から１．４、または１．１から１．３、１．１から１．２または１．２から２．４、または１．２から２．３、または１．２から２．２、または１．２から２．１、または１．２から２．１、または１．２から２．０、または１．２から１．９、または１．２から１．８、または１．２から１．７、または１．２から１．６、または１．２から１．４、または１．２から１．３、または１．３から２．４、または１．３から２．３、または１．３から２．２、または１．３から２．１、または１．３から２．０、または１．３から１．９、または１．３から１．８、または１．３から１．７、または１．３から１．６、または１．３から１．４、または１．４から２．４、または１．４から２．３、または１．４から２．２、または１．４から２．１、または１．４から２．０、または１．４から１．９、または１．４から１．８、または１．４から１．７、または１．４から１．６、または１．５から２．４、または１．５から２．３、または１．５から２．２、または１．５から２．１、または１．５から２．０、または１．５から１．９、または１．５から１．８、または１．５から１．７、または１．５から１．６、または１．６から２．４、または１．６から２．３、または１．６から２．２、または１．６から２．１、または１．６から２．０、または１．６から１．９、または１．６から１．８、または１．６から１．７、または１．７から２．４、または１．７から２．３、または１．７から２．２、または１．７から２．１、または１．７から２．０、または１．７から１．９、または１．７から１．８、または１．８から２．３、または１．８から２．１、または１．８から２．０、または１．８から１．９、または１．９から２．３、または１．９から２．２、または１．９から２．１、または１．９から２．０、または２．０から２．４、または２．０から２．３、または２．０から２．２、または２．０から２．１、または２．１から２．４、または２．１から２．３、または２．１から２．２、または２．２から２．３である。

【００５２】

一実施形態において、またはこの第３の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、DS_{Bu}は、０．１から１．３５、または０．１から１．３、または０．１から１．２５、または０．１から１．２、または０．１から１．１５、または０．１から１．１、または０．１から１．０、または０．１から０．８、または０．１から０．６、または０．２から１．３５、または０．２から１．３、または０．２から１．２５、または０．２から１．２、または０．２から１．１５、または０．２から１．１、または０．２から１．０、または０．２から０．８、または０．２から０．６、または０．２から０．４、または０．３から１．３５、または０．３から１．３、または０．３から１．２５、または０．３から１．２、または０．３から１．１５、または０．３から１．１、または０．３から１．０、または０．３から０．８、または０．３から０．６、または０．３から０．５、または０．４から１．３５、または０．４から１．３、または０．４から１．２５、または０．４から１．２、または０．４から１．１５、または０．４から１．１、または０．４から１．０、または０．４から０．８、または０．４から０．６、または０．５から１．３５、または０．５から１．３、または０．５から１．２５、または０．５から１．２、または０．５から１．１５、または０．５から１．１、または０．５から１．０、または０．５から０．８、または０．５から０．７、または０．６から１．３５、または０．６から１．３、または０．６から１．２５、または０．６から１．２、または０．６から１．１５、または０．６から１．１、または０．６から１．０、または０．６から０．８、または０．７から１．３５、または０．７から１．３、または０．７から１．２５、または０．７から１．２、または０．７から１．１５、または０．７から１．１、または０．７から１．０、または０．８から１．３５、または０．８から１．３、または０．８から１．２５、または０．８から１．２、または０．８から１．１５、または０．８から１．１、または０．８から１．０、または０．９から１．３５、または０

．９から１．３、または０．９から１．２５、または０．９から１．２、または０．９から１．１５、または０．９から１．１、または１．０から１．３５、または１．０から１．３、または１．０から１．２５、または１．０から１．２、または１．０から１．１５、または１．０から１．１、または１．０５から１．３５、または１．０５から１．３、または１．０５から１．２５、または１．０５から１．２、または１．０５から１．１５、または１．０５から１．１、または１．１から１．４、または１．１から１．３５、または１．１から１．３、または１．１から１．２５、または１．１から１．２、または１．１から１．１５、または１．１５から１．４、または１．１５から１．３５、または１．１５から１．３、または１．１５から１．２５、または１．１５から１．２、または１．２から１．４、または１．２から１．３５、または１．２から１．３、または１．２から１．２５、または１．２５から１．４、または１．２５から１．３５、または１．２５から１．３、または１．３から１．４、または１．３から１．３５である。

【００５３】

一実施形態において、またはこの第３の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、DS_{OH}は、０．５から１．０、または０．５から０．９５、または０．５から０．９、または０．５から０．８５、または０．５から０．８、または０．５から０．７５、または０．５から０．７、または０．５から０．６５、または０．５から０．６、または０．５から０．５５、または０．５５から１．０、または０．５５から０．９５、または０．５５から０．９、または０．５５から０．８５、または０．５５から０．８、または０．５５から０．７５、または０．５５から０．７、または０．５５から０．６５、または０．５５から０．６、または０．６から０．６５、または０．６から０．７、または０．６から０．７５、または０．６から０．８、または０．６から０．８５、または０．６から０．９、または０．６から０．９５、または０．６から１．０、または０．６５から０．７、または０．６５から０．７５、または０．６５から０．８、または０．６５から０．８５、または０．６５から０．９、または０．６５から０．９５、または０．６５から１．０である。

【００５４】

一実施形態において、またはこの第３の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、DS_{Bu}およびDS_{Ac}の合計は、１．６５から２．３、または１．６５から２．２、または１．６５から２．１、または１．６５から２．０、または１．６５から１．９、または１．６５から１．８、または１．７から２．３、または１．７から２．２、または１．７から２．１、または１．７から２．０、または１．７から１．９、または１．７から１．８、または１．７５から２．３、または１．７５から２．２、または１．７５から２．１、または１．７５から２．０、または１．７５から１．９、または１．８から２．３、または１．８から２．２、または１．８から２．１、または１．８から２．０、または１．８から１．９、または１．９から２．３、または１．９から２．２、または１．９から２．１、１．９から２．０または２．０から２．４、または２．０から２．３、または２．０から２．２、または２．０から２．１である。

【００５５】

一実施形態において、またはこの第３の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、ＭＣＥはＯＥＣＤ　３０１Ｆ試験法に従って５６日後に、少なくとも４０％の生分解性、少なくとも４５％の生分解性、または少なくとも５０％の生分解性、または少なくとも５５％の生分解性を示す、少なくとも６０％の生分解性、または少なくとも６５％の生分解性、または少なくとも７０％の生分解性、または少なくとも７５％の生分解性、または少なくとも８０％の生分解性、または少なくとも８５％の生分解性を示す。

【００５６】

一実施形態において、またはこの第３の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、ＭＣＥは、５，０００から１００，０００　Ｄａ、または５，０００から５０，０００　Ｄａ、または５，０００から２５，０００　Ｄａ、または１５，０００

から１００，０００　Ｄａ、または１５，０００から５０，０００　Ｄａ、または１５，０００から２５，０００　Ｄａ、または５０，０００から１００，０００　Ｄａ、または７５，０００から１００，０００　Ｄａ、または１５，０００から２５０，０００　Ｄａの範囲の重量平均分子量を有する。

【００５７】

混合セルロースエステル組成物

本出願はさらに、第４の側面において、先に開示した混合セルロースエステルのいずれかを含む組成物を開示する。

【００５８】

一実施形態において、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、本組成物は、セルロースエステル組成物の総重量基準で、本明細書に記載の生分解性混合セルロースエステルの１種以上を少なくとも５５、少なくとも６０、少なくとも６５、少なくとも７０、少なくとも７５、少なくとも８０、少なくとも８５、少なくとも９０、少なくとも９５、または少なくとも９９重量％を含んでもよい。それに加えて、あるいはその代わりに、本組成物は、セルロースエステル組成物の総重量基準で、本明細書に記載の生分解性混合セルロースエステルの１種以上を９９重量％未満、９５重量％未満、９０重量％未満、８５重量％未満、８０重量％未満、７５重量％未満、または７０重量％未満を含んでもよい。

【００５９】

一実施形態において、またはこの第４の側面の任意の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、本組成物は、可塑剤をさらに含む。可塑剤は、ＭＣＥの溶融温度Ｔｇ、および／または溶融粘度を低下させる。

【００６０】

この実施形態の一クラスにおいて、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスとの組み合わせにおいて、可塑剤は、トリアセチン、クエン酸トリエチル、ポリエチレングリコール、ベンゾフレックス、プロピレングリコール、ポリソルベータムスクロースオクタアセテート、アセチル化クエン酸トリエチル、クエン酸アセチルトリブチル、Ａｄｍｅｘ、トリプロピオニン、Ｓｃａｎｄｉｆｌｅｘ、ポロキサマー共重合体、コハク酸ポリエチレングリコール、アジピン酸ジイソブチル、ポリビニルピロリドン、およびグリコールトリベンゾエートである。

【００６１】

この実施形態の一クラスにおいて、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、可塑剤は、セルロースエステル組成物の重量基準で、１から４０重量％、または１から３０重量％、または１から２０重量％、または１から１０重量％、または１から５重量％、または５から４０重量％、または５から３０重量％、または５から２０重量％、または５から１０重量％、または５から５重量％、または１０から４０重量％、または１０から３０重量％、または１０から２０重量％、または１０から１０重量％、または１０から５重量％、または１５から４０重量％、または１５から３０重量％、または１５から２０重量％、または１５から１０重量％、または１５から５重量％の量で存在する。

【００６２】

この実施形態の一クラスでは、可塑剤は生分解性可塑剤である。生分解性可塑剤の例としては、トリアセチン、クエン酸トリエチル、クエン酸アセチルトリエチル、ポリエチレングリコール、Ｂｅｎｚｏｆｌｅｘ（登録商標）可塑剤シリーズのような安息香酸エステル含有可塑剤、ポリコハク酸ブチレンのようなポリアルキルコハク酸エステル、ポリエーテルスルホン、アジピン酸エステル可塑剤、Ｐａｒａｐｌｅｘ（登録商標）可塑剤シリーズなどのエポキシ化大豆油、スクロース系可塑剤、セバシン酸ジブチル、トリブチリン、酢酸イソ酪酸スクロース、Ｒｅｓｏｌｆｌｅｘ（登録商標）可塑剤シリーズ、リン酸トリフェニル、グリコール酸エステル、ポリエチレングリコール、２，２，４－トリメチルペンタン－１，３－ジイルビス（プロパン酸２－メチル）、およびポリカプロラクトンがあげ

られる。

【００６３】

一実施形態において、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、組成物は、ＭＣＥとは異なる少なくとも１種の生分解性重合体をさらに含む。

【００６４】

この実施形態の一クラスにおいて、またはこの第４の側面、クラスもしくはサブクラスの任意の他の実施形態と組み合わせて、生分解性重合体は、ポリヒドロキシアルカノエート（ＰＨＡおよびＰＨＢ）、ポリ乳酸（ＰＬＡ）、ポリカプロラクトン（ＰＣＬ）、ポリ（アジピン酸ブチレン－ｃｏ－テレフタル酸ブチレン）（ＰＢＡＴ）、ポリコハク酸エチレン（ＰＥＳ）、ポリ酢酸ビニル（ＰＶＡ）、ポリコハク酸ブチレン）（ＰＢＳ）およびポリ（ブチレンサクシナート－ｃｏ－アジパート）（ＰＢＳＡ）などの共重合体、他のセルロースエステル、セルロースエーテル、デンプン、タンパク質、それらの誘導体、およびそれらの組み合わせから選択される。特定の実施形態において、生分解性重合体は、本明細書に記載の生分解性混合セルロースエステルとは異なる生分解性セルロースエステル、例えば、酢酸セルロースである。

【００６５】

この実施形態の一クラスにおいて、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、本組成物は、２種以上の生分解性重合体を含む。

【００６６】

この実施形態の一クラスにおいて、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、この組成物は、組成物の総重量基準で、０．１から６０重量％、０．１から５０重量％、または０．１から４０重量％、または０．１から３０重量％、または０．１から２０重量％、または０．１から１５重量％、または０．１から１０重量％、または０．１から５重量％、または１から４０重量％、または１から３０重量％、または１から２５重量％、または１から２０重量％、または１から１０重量％、または１から５重量％、または５から４０重量％、または５から３０重量％、または５から２５重量％、または５から２０重量％、または５から１０重量％の量の生分解性重合体を含む。

【００６７】

一実施形態において、またはこの第４の側面の任意の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、本組成物は、充填剤、添加剤、安定剤、および／または香り調整剤のうちの少なくとも１種をさらに含む。

【００６８】

この実施形態の一クラス、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスとの組み合わせにおいて、前記充填剤は、生分解性および／または堆肥化性を向上させる種類のものであり、かつその量で存在する。

【００６９】

この実施形態の一クラスにおいて、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、本組成物は、以下から選択される少なくとも１種の充填剤を含む：炭水化物（糖および塩）、セルロース系および有機充填剤（木粉、木繊維、麻、炭素、石炭粒子、グラファイト、デンプン）、鉱物および無機充填剤（炭酸カルシウム、タルク、シリカ、二酸化チタン、ガラス繊維、ガラス球、窒化ホウ素、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、水酸化カルシウム、アルミナ、クレー）、食品廃棄物または副産物（卵殻、蒸留かす、コーヒーかす）、乾燥剤（例えば硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、酸化マグネシウム、酸化カルシウム）、アルカリ性充填剤（例えばNa_2CO_3、$MgCO_3$）、またはこれらの充填剤の組み合わせ（例えば、混合物）。

【００７０】

この実施形態の一クラスまたはこの第４の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスとの組み合わせにおいて、本組成物は、着色剤添加剤としても機能する少なくとも１種の

充填剤を含むことができる。このクラスの一サブクラスにおいて、またはこの第４の側面の任意の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスとの組み合わせにおいて、着色剤添加剤充填剤は、炭素、グラファイト、二酸化チタン、不透明化剤、染料、顔料、トナーおよびそれらの組み合わせから選択することができる。

【００７１】

この実施形態の一クラス、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、本組成物は、安定剤または難燃剤としても機能する少なくとも１種の充填剤を含むことができる。

【００７２】

この実施形態の一クラスにおいて、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、本組成物は、組成物の総重量基準で、１から６０重量％、または５から５５重量％、または５から５０重量％、または５から４５重量％、または５から４０重量％、または５から３５重量％、または５から３０重量％、または５から２５重量％、または１０から５５重量％、または１０から５０重量％、または１０から４５重量％、または１０から４０重量％、または１０から３５重量％、または１０から３０重量％、または１０から２５重量％、または１５から５５重量％、または１５から５０重量％、または１５から４５重量％、または１５から４０重量％、または１５から３５重量％、または１５から３０重量％、または１５から２５重量％、または２０から５５重量％、または２０から５０重量％、または２０から４５重量％、または２０から４０重量％、または２０から３５重量％、または２０から３０重量％の量の少なくとも１種の充填剤をさらに含む。

【００７３】

この実施形態の一クラスにおいて、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、前記安定剤は、紫外線吸収剤、酸化防止剤（例えば、アスコルビン酸、ＢＨＴ、ＢＨＡ）、酸もしくはラジカル補足剤、エポキシ化油（例えば、エポキシ化大豆油）、またはそれらの組み合わせのうちの少なくとも１種である。

【００７４】

この実施形態の一クラスにおいて、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、前記安定剤は、１種以上の二次酸化防止剤を含む。

【００７５】

この実施形態の一クラスまたはこの第４の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスとの組み合わせにおいて、前記安定剤は、１種以上の二次酸化防止剤から選択される第１の安定剤成分、および１種以上の一次酸化防止剤、クエン酸またはそれらの組み合わせから選択される第２の安定剤成分を含む。

【００７６】

この実施形態の一クラス、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスとの組み合わせにおいて、前記添加剤は、有機酸、塩、ワックス、相溶化剤、生分解促進剤、染料、顔料、着色剤、光沢調整剤、滑剤、酸化防止剤、粘度調整剤、抗真菌剤、防曇剤、衝撃調整剤、抗菌剤、軟化剤、離型剤、またはこれらの組み合わせである。なお、同じ種類の化合物または材料が、組成物中の複数の範疇の成分として確認されるか含まれるかも知れない。例えば、ポリエチレングリコール（ＰＥＧ）は、可塑剤として、または親水性重合体もしくは生分解促進剤のような可塑剤として機能しない添加剤として機能し得る。具体的には、低分子量のＰＥＧは可塑効果を有する添加剤として、高分子量のＰＥＧは親水性重合体として機能するが可塑効果を有しない添加剤として機能し得る。

【００７７】

酸化防止剤は、一次酸化防止剤と二次酸化防止剤を含むいくつかのクラスに分類することができる。一次酸化防止剤は一般に、本質的にフリーラジカル失活物質（捕捉剤）として機能することが知られている。二次酸化防止剤は一般に、ヒドロペルオキシド（ＲＯＯＨ）がアルコキシラジカルやヒドロキシラジカルに分解する前に、非反応性生成物に分解することが知られている。二次酸化防止剤は相乗的な阻害効果を得るためにフリーラジカル

捕捉剤（一次酸化防止剤）と組み合わせて使用されることが多く、二次酸化防止剤はフェノール系一次酸化防止剤の寿命を延ばすために使用される。

【００７８】

「一次酸化防止剤」は、水素移動を経て過酸化物ラジカルと反応し、ラジカルを消滅させる作用をする酸化防止剤である。一次酸化防止剤は一般に、立体障害フェノールや二級芳香族アミンのような反応性のヒドロキシ基やアミノ基を含む。一次酸化防止剤の例としては、ＢＨＴ、Ｉｒｇａｎｏｘ（登録商標） １０１０、１０７６、１７２６、２４５、１０９８、２５９、１４２５、Ｅｔｈａｎｏｘ（登録商標） ３１０、３７６、３１４、３３０、Ｅｖｅｒｎｏｘ（登録商標） １０、７６、１３３５、１３３０、３１１４、ＭＤ１０２４、１０９８、１７２６、１２０、２２４６、および５６５；Ａｎｏｘ（登録商標） ２０、２９、３３０、７０、ＩＣ－１４、および１３１５；Ｌｏｗｉｎｏｘ（登録商標） ５２０、１７９０、２２ＩＢ４６、２２Ｍ４６、４４Ｂ２５、ＡＨ２５、ＧＰ４５、ＣＡ２２、ＣＰＬ、ＨＤ９８、ＴＢＭ－６、およびＷＳＰ；Ｎａｕｇａｒｄ（登録商標） ４３１、ＰＳ４８、ＳＰ、および４４５；Ｓｏｎｇｎｏｘ（登録商標） １０１０、１０２４、１０３５、１０７６ ＣＰ、１１３５ ＬＱ、１２９０ ＰＷ、１３３０ ＦＦ、１３３０ ＰＷ、２５９０ ＰＷ、および３１１４ ＦＦ；ならびにＡＤＫ Ｓｔａｂ ＡＯ－２０、ＡＯ－３０、ＡＯ－４０、ＡＯ－５０、ＡＯ－６０、ＡＯ－８０、およびＡＯ－３３０があげられる。

【００７９】

「二次酸化防止剤」は、しばしばヒドロペルオキシド分解剤と呼ばれる。これらはヒドロペルオキシドと反応し、ラジカル以外の非反応性で熱的に安定な生成物に分解することで作用する。一次酸化防止剤と併用されることが多い。二次酸化防止剤の例としては、有機リン系化合物（ホスファイト、ホスホナートなど）および有機硫黄系化合物が挙げられる。これらの化合物のリン原子や硫黄原子は過酸化物と反応して過酸化物をアルコールに変換する。二次酸化防止剤の例としては、Ｕｌｔｒａｎｏｘ ６２６、Ｅｔｈａｎｏｘ（登録商標） ３６８、３２６、３２７；Ｄｏｖｅｒｐｈｏｓ（登録商標） ＬＰＧ１１、ＬＰＧ１２、ＤＰ Ｓ－６８０、４、１０、Ｓ４８０、Ｓ－９２２８、Ｓ－９２２８Ｔ；Ｅｖｅｒｎｏｘ（登録商標） １６８、６２６；Ｉｒｇａｆｏｓ（登録商標） １２６および１６８；Ｗｅｓｔｏｎ（登録商標） ＤＰＤＰ、ＤＰＰ、ＥＨＤＰ、ＰＤＤＰ、ＴＤＰ、ＴＬＰおよびＴＰＰ；Ｍａｒｋ（登録商標） ＣＨ ３０２、ＣＨ ５５、ＴＮＰＰ、ＣＨ６６、ＣＨ ３００、ＣＨ ３０１、ＣＨ ３０２、ＣＨ ３０４およびＣＨ ３０５；ＡＤＫ Ｓｔａｂ ２１１２、ＨＰ－１０、ＰＥＰ－８、ＰＥＰ－３６、１１７８、１３５Ａ、１５００、３０１０、Ｃ、およびＴＰＰ；Ｗｅｓｔｏｎ ４３９、ＤＨＯＰ、ＤＰＤＰ、ＤＰＰ、ＤＰＴＤＰ、ＥＨＤＰ、ＰＤＤＰ、ＰＮＰＧ、ＰＴＰ、ＰＴＰ、ＴＤＰ、ＴＬＰ、ＴＰＰ、３９８、３９９、４３０、７０５、７０５Ｔ、ＴＬＴＴＰ、およびＴＮＰＰ；Ａｌｋａｎｏｘ ２４０、６２６、６２６Ａ、６２７ＡＶ、６１８Ｆ、および６１９Ｆ；；ならびにＳｏｎｇｎｏｘ（登録商標） １６８０ ＦＦ、１６８０ ＰＷ、および６２８０ ＦＦがあげられる。

【００８０】

このクラスの一サブクラスにおいて、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスとの組み合わせにおいて、香り調節剤は、バニリン、Ｐｅｎｎｙｒｏｙａｌ Ｍ－１１７８、アーモンド、シンナミル、スパイス、スパイス抽出物、揮発性有機化合物もしくは低分子化合物、およびＰｌａｓｔｉｄｏｒから選択され得る。このクラスの一サブクラスにおいて、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスとの組み合わせにおいて、香り調節剤はバニリンである。

【００８１】

このクラスの一サブクラスにおいて、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、香り調整剤は、組成物の総重量基準で、０．０１から１重量％、または０．１から０．５重量％、または０．１から０．２５重量％、または０．１から０．２重量％の量で存在する。香り調整添加剤のメカニズムには、遮蔽、捕捉、補

完、またはこれらの組み合わせを挙げることができる。

【００８２】

このクラスの一サブクラスにおいて、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、前記相溶化剤は非反応性相溶化剤または反応性相溶化剤である。相溶化剤は、組成物中の選択された成分の分散を改善するために、ＭＣＥまたは別の成分が所望の小粒径に到達する能力を高めることができる。

【００８３】

このクラスの一サブクラスにおいて、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、相溶化剤は、組成物の重量基準で、約１から約４０重量％、または約１から約３０重量％、または約１から約２０重量％、または約１から約１０重量％、または約５から約２０重量％、または約５から約１０重量％、または約１０から約３０重量％、または約１０から約２０重量％の量で存在する。

【００８４】

このクラスの一サブクラスにおいて、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスとの組み合わせにおいて、塩は、アルカリ土類金属酸化物、アルカリ土類金属水酸化物、アルカリ土類金属炭酸塩、アルカリ金属炭酸塩、アルカリ金属重炭酸塩、ＺｎＯ、および塩基性Al_2O_3である。このクラスの一サブクラスにおいて、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、塩は、ＭｇＯ、Ｍｇ（ＯＨ）$_2$、$MgCO_3$、ＣａＯ、Ｃａ（ＯＨ）$_2$、$CaCO_3$、$NaHCO_3$、Na_2CO_3、K_2CO_3、ＺｎＯ、$KHCO_3$、または塩基性Al_2O_3である。

【００８５】

このクラスの一サブクラスにおいて、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスとの組み合わせにおいて、有機酸は、酢酸、プロピオン酸、酪酸、吉草酸、クエン酸、酒石酸、シュウ酸、リンゴ酸、安息香酸、ホルメート、アセテート、プロピオネート、ブチレート、バレレート、シトレート、タータレート、オキサレート、マラート、マレイン酸、マレート、フタル酸、フタルレート、ベンゾエート、およびそれらの組み合わせである。

【００８６】

このクラスの一サブクラスにおいて、またはこの第４の側面の任意の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、前記生分解促進剤は、グリコール、ポリグリコール、ポリエーテル、およびポリアルコール、またはポリグリコール酸、ポリ乳酸、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリジオキサン、ポリオキサレート、ポリ（α－ヒドロキシエステル）、ポリカーボネート、ポリ無水物、ポリアセタール、ポリカプロラクトン、ポリオルトエステル、ポリアミノ酸、ポリコハク酸ブチレン、ポリコハク酸エチレンなどの脂肪族ポリエステル、デンプン、再生セルロース、またはＰＢＡＴなどの脂肪族－芳香族ポリエステルなどの他の生分解性重合体を含み得る。

【００８７】

このクラスの一サブクラスにおいて、またはこの第４の側面の任意の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、着色剤には、例えばカーボンブラック、赤色または青色酸化鉄などの酸化鉄、二酸化チタン、二酸化ケイ素、赤色カドミウム、炭酸カルシウム、カオリンクレー、水酸化アルミニウム、硫酸バリウム、酸化亜鉛、酸化アルミニウム、および有機顔料、例えば、アゾおよびジアゾおよびトリアゾ顔料、縮合アゾ、アゾレーキ、ナフトール顔料、アントラピリミジン、ベンズイミダゾロン、カルバゾール、ジケトピロロピロール、フラバンスロン、インジゴイド顔料、イソインドリノン、イソインドリン、イソビオラントロン、金属錯体顔料、オキサジン、ペリレン、ペリノン、ピラントロン、ピラゾロキナゾロン、キノフタロン、トリアリールカルボニウム顔料、トリフェンジオキサジン、キサンテン、チオインジゴ、インダントロン、イソインダントロン、アントアントロン、アントラキノン、イソジベンザントロン、トリフェンジオキサジン、キナクリドン、フタロシアニンシリーズ、特に銅フタロシアニンとその核ハロゲン化誘導体、さらに酸性、塩基性、および媒染染料のレーキ、イソインドリノン顔料、植物および野菜染

料、その他利用可能な着色剤や染料が含まれる。

【００８８】

このクラスの一サブクラスにおいて、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、光沢制御剤は、シリカ、タルク、クレー、硫酸バリウム、炭酸バリウム、硫酸カルシウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウムなどを含むことができる。

【００８９】

このクラスの一サブクラスにおいて、またはこの第４の側面の任意の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、抗真菌剤および／または抗細菌剤には、ポリエン系抗真菌剤（例えば、ナタマイシン、リモシジン、フィリピン、ナイスタチン、アムホテリシンＢ、カンディシン、およびハマイシン）、ミコナゾール（ＷｅｌｌＳｐｒｉｎｇ Ｐｈａｒｍａｃｅｕｔｉｃａｌ ＣｏｒｐｏｒａｔｉｏｎからＭＩＣＡＴＩＮ（登録商標）として市販されている）などのイミダゾール系抗真菌剤、ケトコナゾール（ＭｃＮｅｉｌ ｃｏｎｓｕｍｅｒ ＨｅａｌｔｈｃａｒｅからＮＩＺＯＲＡＬ（登録商標）として市販されている）、クロトリマゾール（Ｍｅｒｃｋ社からＬＯＴＲＡＭＩＮ（登録商標）およびＬＯＴＲＡＭＩＮ ＡＦ（登録商標）、またＢａｙｅｒ社からＣＡＮＥＳＴＥＮ（登録商標）として市販されている）、エコナゾール、オモコナゾール、ビホナゾール、ブトコナゾール、フェンチコナゾール、イソコナゾール、オキシコナゾール、セルタコナゾール（ＯｒｔｈｏＤｅｍａｔｏｌｏｇｉｃｓ社からＥＲＴＡＣＺＯ（登録商標）として市販されている）、スルコナゾール、およびチオコナゾール；トリアゾール系抗真菌薬（フルコナゾール、イトラコナゾール、イサブコナゾール、ラブコナゾール、ポサコナゾール、ボリコナゾール、テルコナゾール、アルバコナゾールなど）、チアゾール系抗真菌薬（例．アバファンギン）、アリルアミン系抗真菌薬（例えば、テルビナフィン（Ｎｏｖａｒｔｉｓ Ｃｏｎｓｕｍｅｒ Ｈｅａｌｔｈ社からＬＡＭＩＳＩＬ（登録商標）として市販されている）、ナフチフィン（Ｍｅｒｚ Ｐｈａｒｍａｃｅｕｔｉｃａｌｓ社からＮＡＦＴＩＮ（登録商標）として市販されている）、ブテナフィン（Ｍｅｒｃｋ社からＬＯＴＲＡＭＩＮ ＵＬＴＲＡ（登録商標）として市販されている））、エキノカンジン系抗真菌薬（例えば、アニデュラファンギン、カスポファンギン、およびミカファンギン）、ポリゴジアル、安息香酸、シクロピロックス、トルナフテート（例えば、ＭＤＳ Ｃｏｎｓｕｍｅｒ Ｃａｒｅ， Ｉｎｃ．からＴＩＮＡＣＴＩＮ（登録商標）として市販されている）、ウンデシレン酸、フルシトシン、５－フルオロシトシン、グリセオフルビン、ハロプロジン、カプリル酸、およびこれらの任意の組み合わせが含まれる。

【００９０】

このクラスの一サブクラスにおいて、またはこの第４の側面の任意の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、使用することができる組成物のメルトフローインデックスまたは粘度を修飾する目的を有する粘度調整剤には、ポリエチレングリコールおよびポリプロピレングリコール、ならびにグリセリンが含まれる。

【００９１】

このクラスの一サブクラスにおいて、またはこの第４の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、離型剤または潤滑剤（例えば脂肪酸、二ステアリン酸エチレングリコール）、アンチブロック剤または滑り剤（例えば脂肪酸エステル、ステアリン酸金属塩（例えば、ステアリン酸亜鉛）、およびワックス）、防曇剤（例えば、界面活性剤）、熱安定剤（例えば、エポキシ安定剤、エポキシ化大豆油（ＥＳＢＯ）、亜麻仁油、およびヒマワリ油の誘導体）、帯電防止剤、発泡剤、殺生物剤、衝撃改良剤、または強化繊維を含んでもよい。

【００９２】

<u>分解と生分解の比較</u>

一般に、分解は、ＤＯＣ（溶存有機炭素）、CO_2生成量、酸素吸収量などのパラメータを測定することで行われる。物質の生分解を調べるには、主にシュトゥルム法、呼吸測定法、放射性標識^{14}C原子試験法の３つの方法がある。シュトゥルム法は、圧力の変化に

よって二酸化炭素の発生を正確に測定する。呼吸測定法は６０日間の酸素消費量を正確に測定する。最後の放射性標識^{14}Ｃ原子試験法は、^{14}Ｃから^{14}CO_2への変換を測定する。適切な装置を使用すれば、３つの方法はすべて水生または堆肥化条件で使用できる。

【００９３】

淡水改良シュトゥルム試験（ＯＥＣＤ　３０１Ｂ）－（全有機炭素分析に基づく）理論収量の割合として生成された二酸化炭素（CO_2）の量を、材料が生分解するかどうかを評価するための基礎として使用する。CO_2は水酸化ナトリウム捕捉によって測定される。この試験は最低２８日間実施され、２８日間の終了時にCO_2の収量が増加の兆しを示している場合は継続される。

【００９４】

生分解試験－酸素消費量（ＯＥＣＤ　３０１Ｆ）を、高分子材料の生分解の監視に使用することができる。ＯＥＣＤ　３０１Ｆは、水生好気性生分解試験であり、酸素消費量を測定して材料の生分解性を決定する。ＯＥＣＤ　３０１Ｆは、ＯＥＣＤ　３０１Ｂ試験では難しい不溶性物質や揮発性物質に対して最も頻繁に使用される。理論酸素要求量（ＴｈＯＤ）を求めるには、試験物質の主要成分の純度または割合が重要である。他のＯＥＣＤ３０１試験方法と同様に、ＯＥＣＤ　３０１Ｆの標準試験期間は最低２８日間であり、生分解性の容易さあるいは本質性（ｒｅａｄｙ　ｏｒ　ｉｎｈｅｒｅｎｔ　ｂｉｏｄｅｇｒａｄａｂｉｌｉｔｙ）を測定することができる。鉱物培地中の被験物質の溶液または懸濁液を植菌し、好気的条件で暗所または拡散光の下で培養する。参照化合物（通常、酢酸ナトリウムまたは安息香酸ナトリウム）を並行して培養し、手順の動作をチェックする。

【００９５】

生分解性は、易生分解性、本質的生分解性、非生分解性の３つに分類される。２８日以内に理論酸素要求量の６０％以上に達するものは易生分解性である。本質的生分解性の材料も６０％のレベルに達するが、それは２８日間のウィンドウが経過した後である。通常、易生分解性材料の試験は２８日間であるが、本質的生分解性の材料に分類する場合は、試験期間を延長することができる。

【００９６】

オキシトップ（ＯｘｉＴｏｐ）法は、生分解性を酸素消費量として報告するが、生分解性を分析するために改良されたシュトゥルム法であり、試験中に発生するCO_2からの圧力をＢＯＤ（生物学的酸素要求量）に変換する。オキシトップは、水生生物分解のための使いやすいフォーマットで正確な測定を提供する。生物学的酸素要求量（ＢＯＤ）は、オキシトップ（登録商標）Ｃｏｎｔｒｏｌ　ＯＣ　１１０呼吸計システムを用いて経時的に測定された。これは、密閉ボトルシステムで酸素が消費されるときに発生する負圧を測定することで達成される。O_2が消費されたときに放出されるCO_2を回収するために、ＮａＯＨ錠剤をシステムに加える。CO_2とＮａＯＨは反応してNa_2CO_3を形成し、CO_2を気相から引き抜き、測定可能な負圧を発生させる。オキシトップ測定ヘッドはこの負圧の値を記録し、その情報を無線で制御装置に伝え、制御装置は生成されたCO_2を１：１の比率によりＢＯＤに変換する。測定された生物学的酸素要求量は、各試験物質の理論的酸素要求量と比較し、生分解の割合を決定することができる。オキシトップは、材料の易生分解性または本質的生分解性の選別に使用できる。

【００９７】

<u>混合セルロースエステル組成物から形成されたビーズおよび成形品</u>

本出願はまた、第５の側面として、先に開示した混合セルロースエステルのいずれか１種を含む物品を開示する。

【００９８】

本出願はまた、第６の側面として、先に開示した混合セルロースエステル（すなわち、第１の側面、第２の側面、および／または第３の側面）またはセルロースエステル組成物（すなわち、第４の側面）のいずれか１種を含む生分解性ビーズを開示する。

【００９９】

一実施形態において、またはこの第６の側面の任意の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、生分解性ビーズは、（ｉ）先に開示した混合セルロースエステルおよび／または混合セルロースエステル組成物のいずれか１種を含むドープを形成する工程；（ｉｉ）前記ドープの少なくとも一部を攪拌下で水性混合物と接触させ、それにより複数個の生分解性ビーズを含む反応混合物を形成する工程；および（ｉｉｉ）前記反応混合物から前記生分解性ビーズの少なくとも一部を回収する工程で製造されてもよい。例示的なビーズ形成手順はＥＰ０７５０００７Ａ１に記載されており、その開示は参照によりその全体が組み込まれる。

【０１００】

一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、前記ドープは、アルカノール（例えば、メタノール、エタノール、および／またはプロパノール）をさらに含んでもよい。

【０１０１】

一実施形態において、またはこの第６の態様の任意の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、前記ドープは、カルボキシル、第１のＣ１～Ｃ３アルキル、および第２のＣ１～Ｃ２アルキルを含む化合物をさらに含んでもよい。このような実施形態において、この化合物は、酢酸アルキルであってもよい。

【０１０２】

一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、前記ドープは、酢酸メチルなどの酢酸アルキルをさらに含んでもよい。

【０１０３】

一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、前記ドープは、水、アルカノール、および酢酸エチルなどの酢酸アルキルをさらに含んでもよい。

【０１０４】

一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、前記水性混合物は、酢酸アルキル（例えば、酢酸エチル）および／またはメチルセルロースを含んでもよい。

【０１０５】

一実施形態において、またはこの第６の側面の任意の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、前記水性混合物は、水、酢酸アルキル（例えば、酢酸エチル）、界面活性剤、およびメチルセルロースを含んでもよい。

【０１０６】

一実施形態において、またはこの第６の側面の任意の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、前記生分解性ビーズは、１工程以上の遠心工程および／または１工程以上の濾過工程を経て反応混合物から回収されてもよい。

【０１０７】

一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、前記形成工程および接触工程は、５℃から４０℃の範囲の温度（例えば、室温）および３気圧未満の圧力（例えば、大気圧）で起こり得る。

【０１０８】

一実施形態では、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、形成されたビーズは、回収工程の後、４時間から２４時間、７５℃から１５０℃の温度範囲で乾燥処理に供されてもよい。

【０１０９】

一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、前記生分解性ビーズは、ＯＥＣＤ　３０１Ｆ試験法に従って、５６日で少なくとも４０％の生分解性を示す。

【０１１０】

一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラス

と組み合わせて、前記生分解性ビーズは、ＯＥＣＤ　３０１Ｆ試験法に従って、少なくとも４０％の生分解性、少なくとも４５％の生分解性、または少なくとも５０％の生分解性、または少なくとも５５％の生分解性、または少なくとも６０％の生分解性、または少なくとも６５％の生分解性、または少なくとも７０％の生分解性、または少なくとも７５％の生分解性、または少なくとも８０％の生分解性、または少なくとも８５％の生分解性を示す。

【０１１１】

一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、前記生分解性ビーズは、本明細書に記載の生分解性混合セルロースエステルの１種以上を、ビーズの総重量基準で、少なくとも５５、少なくとも６０、少なくとも６５、少なくとも７０、少なくとも７５、少なくとも８０、少なくとも８５、少なくとも９０、少なくとも９５、または少なくとも９９重量％含んでもよい。これに加えてあるいはその代わりに、前記生分解性ビーズは、本明細書に記載の生分解性混合セルロースエステルの１種以上を、ビーズの総重量基準で、９９重量％未満、９５重量％未満、９０重量％未満、８５重量％未満、８０重量％未満、７５重量％未満、または７０重量％未満含んでもよい。

【０１１２】

一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、前記生分解性ビーズは、ビーズの総重量基準で、本明細書に記載の生分解性混合セルロースエステルの１種以上を６０重量％から９９重量％含むことができる。

【０１１３】

一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、前記生分解性ビーズは、本明細書に記載の生分解性混合セルロースエステル組成物を、ビーズの総重量基準で、少なくとも５５、少なくとも６０、少なくとも６５、少なくとも７０、少なくとも７５、少なくとも８０、少なくとも８５、少なくとも９０、少なくとも９５、または少なくとも９９重量％含んでもよい。これに加えてあるいはその代わりに、前記生分解性ビーズは、本明細書に記載の生分解性混合セルロースエステル組成物の１種以上を、ビーズの総重量基準で、９９重量％未満、９５重量％未満、９０重量％未満、８５重量％未満、８０重量％未満、７５重量％未満、または７０重量％未満含んでもよい。

【０１１４】

一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、前記生分解性ビーズは、本明細書に記載の生分解性混合セルロースエステル組成物の１種以上を、ビーズの総重量基準で、６０重量％から９９重量％含むことができる。

【０１１５】

一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、前記生分解性ビーズは、（１）本明細書に記載される混合セルロースエステルのいずれか、および（２）アセチル置換基の平均置換度（DS_{Ac}）が１．５～２．６であり、かつヒドロキシル置換基の平均置換度（DS_{OH}）が０．４～１．５である生分解性酢酸セルロースを含むことができる。

【０１１６】

一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、前記生分解性ビーズは、ビーズの総重量を基準にして、５５重量％から９９重量％、６０重量％から９９重量％、６５重量％から９９重量％、７０重量％から９９重量％、７５重量％から９９重量％、８０重量％から９９重量％、または８５重量％から９９重量％の本明細書に記載される１種以上の混合セルロースエステル、および１重量％から１５重量％、１重量％から２０重量％、１重量％から２５重量％、１重量％から３０重量％、１重量％から３５重量％、１重量％から４０重量％、または１重量％から４５重量％の生分解性酢酸セルロースを含んでもよい。

【０１１７】
一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、ビーズは、０．５から１００ミクロン、または０．５から５０ミクロン、または０．５から４０ミクロン、または０．５から３０ミクロン、または０．５から２０ミクロン、または０．５から１０ミクロン、または１から１００ミクロン、または１から７０ミクロン、または１から６０ミクロン、または１から５０ミクロン、または１から５２ミクロン、または１から４０ミクロン、または１から３０ミクロン、または１から２０ミクロン、または１から１０ミクロンの直径を有する。
【０１１８】
一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、ビーズは、５０から１００％、または６０から１００％、または７０から１００％、または８０から１００％、または９０から１００％、または５０から９０％、または５０から８０％、または５０から７０％、または６０から９０％、または６０から８０％、または６０から７０％、または７０から９０％、または７０から８０％、または８０から９０％、または少なくとも７０％、または少なくとも８０％、または少なくとも９０％の真球度を示す。真球度は、米国特許公開第２０２０／０２９９４８８号に開示されている手順に従って決定することができる。
【０１１９】
一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、前記ビーズは、ひまし油の代わりに鉱油が使用される試験法ＡＳＴＭ　Ｄ２８１で測定された、少なくとも１００　ｇ当たり３０　ｍＬ、または１００　ｇ当たり３５　ｍＬ、または１００　ｇ当たり４０　ｍＬ、または１００　ｇ当たり４５　ｍＬ、または１００　ｇ当たり５０　ｍＬ、または１００　ｇ当たり５５　ｍＬ、または１００　ｇ当たり６０　ｍＬの吸油量を示す。
【０１２０】
一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、前記生分解性ビーズは、０．２から０．７、０．２から０．６、０．３から０．６、または０．３から０．７の範囲の嵩密度を有する。
【０１２１】
一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、前記生分解性ビーズは、少なくとも０．１、少なくとも０．５、少なくとも１、少なくとも２、少なくとも３、少なくとも４、少なくとも５、少なくとも６、少なくとも７、少なくとも８、少なくとも９、少なくとも１０　m^2／ｇの平均表面積を有する。それに加えてあるいはその代わりに、生分解性ビーズは、２０未満、１９未満、１８未満、１７未満、１６未満、１５未満、１４未満、１３未満、１２未満、１１未満、または１０　m^2／ｇ未満の平均表面積を有していてもよい。
【０１２２】
一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、前記生分解性ビーズは、（ｉ）　１ミクロンから６０ミクロンの平均粒径、（ｉｉ）　０．２から０．７の嵩密度、（ｉｉｉ）　０．１　m^2／ｇから１０　m^2／ｇの平均表面積、または（ｉｖ）　７０％から１００％の真球度を示す。
【０１２３】
一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、前記ビーズは、酢酸セルロースをさらに含み、この酢酸セルロースは、１．５から２．６のアセチル置換基の平均置換度（DS_{Ac}）を有する。この実施形態の一クラスでは、DS_{Ac}は１．８から２．２、または１．５から２．０、または１．８から２．０、または２．０から２．２である。
【０１２４】
一実施形態において、またはこの第６の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、ビーズは、ひまし油の代わりに鉱油を用いるＡＳＴＭ　Ｄ２８１試験法に

より測定される、少なくとも１００　ｇ当たり３０　ｍＬ、または１００　ｇ当たり３５ｍＬ、または１００　ｇ当たり４０　ｍＬ、または１００　ｇ当たり４５　ｍＬ、または１００　ｇ当たり５０　ｍＬ、または１００　ｇ当たり５５　ｍＬ、または１００　ｇ当たり６０　ｍＬの吸油量を示す。

【０１２５】

本出願はまた、第７の側面として、本明細書で先に開示した複数個のビーズを含む組成物を開示する。

【０１２６】

本出願はまた、第８の側面として、先に開示した混合セルロースエステルのいずれか１種を含むフィルムを開示する。

【０１２７】

本出願はまた、第９の側面として、先に開示した組成物または混合セルロースエステルのいずれか１種から調製されたフィルムを開示する。

【０１２８】

一実施形態において、またはこの第９の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、組成物は、１から４０重量％の酢酸セルロースをさらに含み、この酢酸セルロースは、１．５から２．６のアセチル置換基の平均置換度を示す。この実施形態の一クラスでは、DS_{Ac}は１．８から２．２、または１．５から２．０、または１．８から２．０、または２．０から２．２である。

【０１２９】

本出願はまた、第１０の側面として、（Ｉ）混合セルロースエステル（ＭＣＥ）および酢酸セルロース（ＣＡ）を含むセルロースエステル組成物から形成されるセルロースエステル粒子を開示する。この混合セルロースエステルは、（１）複数のアセチル置換基、（２）複数の（C_{2-3}）アルキル－ＣＯ－置換基、および（３）複数のヒドロキシル置換基を含み、このＭＣＥは０．６から２．４のアセチル置換基（DS_{Ac}）の平均置換度を有し、このＭＣＥは０．１から１．１の（C_{2-3}）アルキル－ＣＯ－置換基（DS_{AkCO}）の平均置換度を有し、このＭＣＥは０．５５から１．５であるヒドロキシル置換基（DS_{OH}）の平均置換度を有する。（ＩＩ）酢酸セルロースは、複数のアセチル置換基および複数のヒドロキシル置換基を含み、ＣＡは、１．５から２．６のアセチル置換基の平均置換度（DS_{Ac}）を有し、ＣＡは、０．４から１．５のヒドロキシル置換基の平均置換度（DS_{OH}）を有する。

【０１３０】

一実施形態またはこの第１０の局面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスとの組み合わせにおいて、（C_{2-3}）アルキル－ＣＯ－はプロピオニルである。一実施形態において、またはこの第１０の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスとの組み合わせにおいて、（C_{2-3}）アルキル－ＣＯ－はブチリルである。

【０１３１】

一実施形態またはこの第１０の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスとの組み合わせにおいてセルロースエステル組成物の総重量基準で、ＭＣＥは６０重量％から９９重量％で存在し、ＣＡは１重量％から４０重量％で存在する。一実施形態またはこの第１０の態様の他の実施形態、クラスまたはサブクラスとの組み合わせにおいて、セルロースエステル組成物の総重量基準で、ＭＣＥは５５重量％から９９重量％で存在し、ＣＡは１重量％から４５重量％で存在する。一実施形態またはこの第１０の態様の他の実施形態、クラスまたはサブクラスとの組み合わせにおいて、セルロースエステル組成物の総重量基準で、ＭＣＥは６５重量％から９９重量％で存在し、ＣＡは１重量％から３５重量％で存在する。一実施形態またはこの第１０の態様の他の実施形態、クラスまたはサブクラスとの組み合わせにおいて、セルロースエステル組成物の総重量基準で、ＭＣＥは７０重量％から９９重量％で存在し、ＣＡは１重量％から３０重量％で存在する。一実施形態またはこの第１０の態様の他の実施形態、クラスまたはサブクラスとの組み合わせにおいて、セルロースエステル組成物の総重量基準で、ＭＣＥは７５重量％から９９重量％で存在し、Ｃ

Ａは１重量％から２５重量％で存在する。一実施形態またはこの第１０の態様の他の実施形態、クラスまたはサブクラスとの組み合わせにおいて、セルロースエステル組成物の総重量基準で、ＭＣＥは８０重量％から９９重量％で存在し、ＣＡは１重量％から２０重量％で存在する。一実施形態またはこの第１０の態様の他の実施形態、クラスまたはサブクラスとの組み合わせにおいて、セルロースエステル組成物の総重量基準で、ＭＣＥは８５重量％から９９重量％で存在し、ＣＡは１重量％から２５重量％で存在する。

【０１３２】

一実施形態において、またはこの第１０の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、セルロースエステル粒子は、（ｉ）　１ミクロンから６０ミクロンの平均粒径、（ｉｉ）　０．２から０．７の嵩密度、（ｉｉｉ）　０．１　m^2／ｇから１０　m^2／ｇの平均表面積、または（ｉｖ）　７０％から１００％の真球度のうちの少なくとも１つを示す。

【０１３３】

本出願はまた、第１１の側面として、（Ａ）セルロースエステル組成物および（Ｂ）溶媒を含むドープ組成物を開示する。このセルロースエステル組成物は、（Ｉ）混合セルロースエステル（ＭＣＥ）および（ＩＩ）酢酸セルロースを含む。この混合セルロースエステルは（１）複数のアセチル置換基、（２）複数の（C_{2-3}）アルキル－ＣＯ－置換基、および（３）複数のヒドロキシル置換基を含み、このＭＣＥは０．６から２．４のアセチル置換基（DS_{Ac}）の平均置換度を有し、このＭＣＥは０．１から１．１の（C_{2-3}）アルキル－ＣＯ－置換基（DS_{AkCO}）の平均置換度を有し、このＭＣＥは０．５５から１．５のヒドロキシル置換基（DS_{OH}）の平均置換度を有する。前記酢酸セルロース（ＣＡ）は、複数のアセチル置換基および複数のヒドロキシル置換基を含み、前記ＣＡは、１．５から２．６のアセチル置換基の平均置換度（DS_{Ac}）を有すし、ＣＡは、０．４から１．５のヒドロキシル置換基（DS_{OH}）の平均置換度を有する。前記溶媒は、（１）水、（２）酢酸（C_{1-2}）アルキル、および（３）（C_{1-5}）アルカノールを含み、該ドープ組成物は、３０００から９０００　ｃＰの範囲の粘度を示す。

【０１３４】

一実施形態またはこの第１１の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスとの組み合わせにおいて、（C_{2-3}）アルキル－ＣＯ－はプロピオニルである。一実施形態またはこの第１１の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスとの組み合わせにおいて、（C_{2-3}）アルキル－ＣＯ－はブチリルである。

【０１３５】

一実施形態またはこの第１１の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスとの組み合わせにおいて、セルロースエステル組成物の総重量基準で、ＭＣＥは６０重量％から９９重量％で存在し、ＣＡは１重量％から４０重量％で存在する。一実施形態またはこの第１１の態様の他の実施形態、クラスまたはサブクラスとの組み合わせにおいて、セルロースエステル組成物の総重量基準で、ＭＣＥは５５重量％から９９重量％で存在し、ＣＡは、１重量％から４５重量％で存在する。一実施形態またはこの第１１の態様の他の実施形態、クラスまたはサブクラスとの組み合わせにおいて、セルロースエステル組成物の総重量基準で、ＭＣＥは６５重量％から９９重量％で存在し、ＣＡは１重量％から３５重量％で存在する。一実施形態において、またはこの第１１の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、セルロースエステル組成物の総重量基準で、ＭＣＥは７０重量％から９９重量％で存在し、ＣＡは１重量％から３０重量％で存在する。一実施形態において、またはこの第１１の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、セルロースエステル組成物の総重量基準で、ＭＣＥは７５重量％から９９重量％で存在し、ＣＡは１重量％から２５重量％で存在する。一実施形態において、またはこの第１１の側面の他の実施形態、クラスもしくはサブクラスと組み合わせて、セルロースエステル組成物の総重量基準で、ＭＣＥは８０重量％から９９重量％で存在し、ＣＡは１重量％から２０重量％で存在する。一実施形態において、またはこの第１１の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、セルロースエステル組成物の総重量

基準で、ＭＣＥは８５重量％から９９重量％で存在し、ＣＡは１重量％から２５重量％で存在する。

【０１３６】

一実施形態またはこの第１１の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスとの組み合わせにおいて、ドープ組成物の総重量基準で、セルロースエステル組成物は５重量％から２０重量％で存在し、溶媒は８０重量％から９５重量％で存在する。一実施形態またはこの第１１側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスとの組み合わせにおいて、ドープ組成物の総重量基準で、セルロースエステル組成物は５重量％から１５重量％で存在し、溶媒はドープ組成物の総重量基準で、８５重量％から９５重量％で存在する。一実施形態において、またはこの第１１の側面の他の実施形態、クラスまたはサブクラスと組み合わせて、ドープ組成物の総重量基準で、セルロースエステル組成物は５重量％から１０重量％で存在し、溶媒はドープ組成物の総重量基準で９０重量％から９５重量％で存在する。

【０１３７】

本発明を、以下の実施形態例によってさらに説明するが、いうまでもなく、これらの実施形態例は、単に説明のために含まれるものであり、特に断りのない限り、本発明の範囲を限定することを意図するものではない。

【実施例】

【０１３８】

実験の項

略語集

Ac_2Oは無水酢酸、ＡｃＯＨは酢酸、Ｂｉｏｄｅｇは生分解、ＣＡ－３９８－３はＥａｓｔｍａｎ酢酸セルロース３９８－３、ＣＡ－３９８－６はＥａｓｔｍａｎ酢酸セルロース３９８－６、ＣＡ－３９８－１０はＥａｓｔｍａｎ酢酸セルロース３９８－１０、ＣＡ－３９８－３０はＥａｓｔｍａｎ酢酸セルロース３９８－３０、ＣＡ－３９４－６０ＬＦはＥａｓｔｍａｎ酢酸セルロース３９４－６０ＬＦ、ＣＥはセルロースエステル、ＣＥｘは比較例、℃は摂氏、ＣＡＢは酢酸酪酸セルロース、ＣＡは酢酸セルロース、ＤＳは平均置換度、Ｅｘは実施例、DS_{Ac}はアセチル基の平均置換度、DS_{Bu}はブチリル基の平均置換度、DS_{OH}はヒドロキシル基の平均置換度、ｇはグラム、ｈは時間、ｋｇはキログラム、$Mg(OAc)_2$は酢酸マグネシウム、ｍｉｎは分（ｓ）、ｍＬはミリリットル、M_wは重量平均分子量、ＯＡｃは酢酸、Pr_2Oは無水プロピオン酸、ＰｒＯＨはプロピオン酸、ｒｔは室温、ｓｏｌｎは溶液、T_gはガラス転移温度である。

【０１３９】

酢酸酪酸セルロース（Ｅｘ　１）（DS_{Ac}　＝　１．１、DS_{Pr}　＝　１．１２、DS_{OH}　＝　０．７８、M_w　＝　１５３７７）の調製

【０１４０】

活性化セルロース混合物（セルロース（７．１部）およびＰｒＯＨ（１１．０部））を、オーバーヘッド撹拌しながら容器中で１５℃に冷却した。続いて、１５℃に冷却した硫酸（０．２部）、Ac_2O（１１．３部）およびPr_2O（１３．３部）の溶液（アシル化溶液）を、攪拌しながら冷却した活性化セルロース混合物に添加した。得られた反応混合物を２３℃に温め、２３℃で６０分間撹拌した。その後、反応混合物を４５分かけて６３℃まで加熱し、その時点でＰｒＯＨ（３２．３部）とH_2O（１１．３部）の溶液を加えた。その後、混合物を７１℃で６００分間撹拌した。混合物を、$Mg(OAc)_2$・$4H_2O$（０．４５部）のＡｃＯＨ（７．３部）およびH_2O（５．６部）溶液で処理し、混合物を３０分間撹拌し、ｒｔまで冷却し、混合物をろ過した。濾液からセルロースエステルを水で沈殿させ、市販の混合機で撹拌し、セルロースエステルを濾過し、回収し、固形物を流水で洗浄し、６０℃に設定した真空オーブンで乾燥するまで乾燥させ、所望の生成物を得た。

【０１４１】

酢酸プロピオン酸セルロース１の調製手順を応用して、以下の表１のセルロースエステルを調製した。

【０１４２】
【表１】

Ex 2-5、7-8、および CEx 5 の調製条件

Ex	活性化セルロース混合物		アシル化溶液			加水分解溶液		加水分解条件	
	セルロース (部)	酸 (部)	H_2SO_4 (部)	Ac_2O (部)	Pr_2O (部)	PrOH (部)	H_2O (部)	時間 (分)	温度 (℃)
2	7.1	PrOH (11.0)	0.2	11.3	13.3	32.3	11.3	900	71
3	7.1	PrOH (11.8)	0.2	3.8	22.2	32.0	11.1	900	71
4	7.0	PrOH (8.5) AcOH (4.6)	0.2	17.8	5.0	32.2	11.3	600	71
5	7.1	PrOH (11.1)	0.2	10.1	14.6	32.1	11.3	1125	71
7	38	PrOH (62)	1	55	44	74	26	750	71
8	38	PrOH (62)	1	55	44	74	26	800	71
CEx 5	38	PrOH (62)	1	20	79	74	26	1350	71

【０１４３】
表２に、上記で調製したセルロースエステルの特性を示す。
【表２】

Ex 2-5、7-8、CEx 5 の置換度と分子量

Ex	DS_{Ac}	DS_{Pr}	Total DS	DS_{OH}	M_w (Da)
2	0.90	1.06	1.96	1,04	102937
3	0.50	1.64	2.14	1,9	166383
4	1.79	0.45	2.24	0.76	128258
5	0.59	1.07	1.66	1.34	45963
7	1.40	0.81	2.21	0.79	65400
8	1.18	0.78	1.96	1.04	73400
CEx 5	0.55	1.34	1.89	1.11	46000

【０１４４】
酢酸酪酸セルロース（Ｅｘ　６）（DS_{Ac} ＝ ２．１７、DS_{Bu} ＝ ０．２１、DS_{OH} ＝ ０．６２、 M_w ＝ ８０，０００から１０５，０００）の調製
活性化セルロース混合物（セルロース（５．４部）とＡｃＯＨ （２１．５部））に硫酸を加えて撹拌しながら３２℃まで冷却した。続いて、Ac_2O （１１．３部）とBu_2O （７．３部）の混合物を加え、撹拌しながら混合物を約９℃まで冷却した。さらに硫酸を合計０．４部加え、得られた反応混合物を５５℃に温めた。この反応混合物にＡｃＯＨ （２３．３部）とH_2O （９．０部）の混合物を加えた。その後、この混合物を６８℃で４９５分間撹拌したが、８０分後に$Mg(OAc)_2$（０．２６部）、ＢｕＯＨ（８．７部）、ＡｃＯＨ （０．０６部）およびH_2O （３．８部）の混合物を加えた

。十分な時間を置いた後、Ｍｇ（ＯＡｃ）$_2$　（０．３７部）、ＢｕＯＨ　（１．９部）、ＡｃＯＨ　（０．０９部）およびＨ$_2$Ｏ　（６．７部）の溶液で混合物を完全に中和した。その後、混合物を水中で沈殿させ、一般的な方法で洗浄し、乾燥させた。

【０１４５】

【表３】

Ex 9-10 および CEx 6-7 の調製条件

Ex	活性化セルロース混合物		アシル化溶液			加水分解溶液		加水分解条件	
	セルロース (部)	酸 (部)	H_2SO_4 (部)	Ac_2O (部)	Pr_2O (部)	PrOH (部)	H_2O (部)	時間 (分)	温度 (℃)
9	22	78	2	60	38	72	28	720	71
10	22	78	2	60	38	72	28	840	71
CEx 6	37	63	1	39	60	74	26	1350	71
CEx 7	35	65	1	59	40	74	26	600	71

【０１４６】

【表４】

Ex 9-10 および CEx 6-7 の置換度と分子量

Ex	DS_{Ac}	DS_{Pr}	Total DS	DS_{OH}	M_w (Da)
9	2.01	0.23	2.24	0.76	55796
10	1.98	0.22	2.2	0.80	71904
CEx 6	1.07	0.74	1.81	1.19	29900
CEx 7	1.75	0.65	2.40	0.60	22400

【０１４７】

生分解

ＣＥの生分解性は、ＩＳＯ　１４８５１またはＯＥＣＤ　３０１Ｆ法に従って、水性好気性生分解試験で評価した。総試験期間は約５６日間であった。試験は２１℃±２℃で行った。生分解試験は、イーストマン廃水処理汚泥を植菌体として用いた。

【０１４８】

この試験では、他の有機炭素源を含まない化学的に定義された鉱物培地にＣＥを分散させ、廃水汚泥から微生物を植え付けた。微生物が水性媒体中で試験物質を生分解すると、酸素が微生物によって消費され、試験物質の炭素が二酸化炭素に変換される。この過程で発生した二酸化炭素は、ボトル内のＮａＯＨ（密閉された試験ボトル内の籠に置かれたＮａＯＨ）に捕捉され、ヘッドスペース内の圧力低下を引き起こす。この圧力低下は、消費される酸素に直接対応し、したがって試験材料の生分解に対応する。

【０１４９】

生分解性を、酸素消費量から求め、試験品の理論酸素要求量に対する対照補正後のＢＯＤ（生物学的酸素要求量）の比率として算出する。５６日後までに基準物質（ＩＳＯ　１４８５１による）の少なくとも９０％または９０％に達していれば、その物質を生分解性とみなす。また、ＥＣＨＡのマイクロプラスチックに関する提案では、６０日後までに少なくとも６０％の生分解率に達していれば生分解性とみなす。

【０１５０】

【表５】

CEx 1-7 と Ex 1-10 の淡水生分解特性

Ex 番号	試験期間(日)	終了時の劣化(%)	生分解の開始（日）	生分解の初期勾配(%/日)
CEx 1	56	83.8-86.0	1.4-3.0	6.0-8.0
CEx 2	36	72.1	6.0	8.7
CEx 3	54	2.6	N/A	N/A
CEx 4	56	0.3	N/A	N/A
1	40	66.7	20.9	4.4
2	56	67.0	16.2	5.0
3	-	-	-	-
4	56	80.8	5.5	11.8
5	56	68.0	10.7	6.6
6	56	59.6	11.8	3.9
7	35	66.0	17.0	4.38
8	26	74.6	9.6	7.52
CEx 5	30	2.2	25.0	1.32
9	55	67.0	14.5	3.01
10	55	81.8	9.6	6.32
CEx 6	31	5.09	NA	NA
CEx 7	30	-1.37	NA	NA

【０１５１】

マイクロビーズの調製

調製手順１

手順１は、ＥＰ０７５０００７（ＥＰ'００７）に開示されている手順に基づく。

【０１５２】

酢酸酪酸セルロースマイクロビーズ７（手順１）

Ｅｘ ６（４０ｇ）、ＥｔＯＡｃ（１８５ｇ）およびＥｔＯＨ（２５ｇ）を油相に用い、Ｂｅｎｅｃｅｌ Ａ４Ｍ（１．５ｇ）、Ｔｗｅｅｎ ２８（４．５ｇ）、水（３５０ｇ）およびＥｔＯＡｃ（５０ｍＬ）を水相に用いた。この水相を、ロートステーターを用いて９０００ｒｐｍで５分間予備混合し、次いで油相を２０分間かけて水相に添加した。形成された油乳化液を５０分間撹拌し、この油乳化液を２００メッシュのふるいを通してろ過し、撹拌下で５分間かけて水（２５００ｍＬ）に入れた。得られた混合物を１時間撹拌し、形成された微粒子を濾過した。得られた微粒子を水で洗浄し、１０，０００で１０分間遠心分離して水相から粒子を分離した（３回繰り返す）。最終的な微粒子は、D_{10}が１．２１ミクロン、D_{50}が４．９６ミクロン、D_{90}が１２ミクロン、多分散度が０．６４６であった。これらは光散乱法によって測定された。D_{10}、D_{50}、およびD_{90}は、それぞれ材料の１０％、５０％、および９０％が含まれる粒子径値である。

【０１５３】

酢酸酪酸セルロースマイクロビーズ １７

酢酸酪酸セルロースマイクロビーズ１７を、酢酸酪酸セルロースマイクロビーズ７の調製手順を応用して合成した。Ｅｘ ６の代わりにＥｘ １０を使用した。ベネセルをカルボキシメチルセルロースに置き換え、Ｔｗｅｅｎ ２８をＴｅｒｇｉｔｏｌ １５ Ｓ－４

０、ステアリン酸グリセロールおよびステアリン酸ＰＥＧ－１００　（１：０．５：０．５の比）に置き換えた。酢酸酪酸セルロースマイクロビーズ１７の粒径は１１ミクロン、嵩密度は０．２９６　ｇ／ｍＬである。

【０１５４】

調製手順２

ドープ

セルロースエステル混合物（９０　ｇ）を酢酸エチル、（C_{2-3}）アルカノール、水の混合物（５４７．７　ｇ、８０：１３：７）に２５０　ｒｐｍで攪拌しながら加えて、セルロースエステル混合物のドープを調製した。得られた混合物を室温で撹拌した（約３０分）。

酢酸酪酸セルロース／酢酸セルロースドープの調製

【０１５５】

表４に、Ｅｘ　６で代表的なドープを調製するために使用した酢酸セルロースを示す。表５に、酢酸エチル、エタノール、および水溶液系からどの酢酸酪酸セルロース／酢酸セルロースドープが可能かを示す。ＣＡＢ／ＣＡ　（６．０　ｇ）を溶媒（３７．０　ｇ（ＥＡ：ＥｔＯＨ：水＝８０：１３：７））に混合してドープを調製した。

【０１５６】

【表６】

混合エステル－酢酸セルロースマイクロビーズの製造に使用される
酢酸セルロース材料に関する記述

CA	DS_{Ac}
CA-398-3	2.4
CA-398-6	2.4
CA-398-10	2.4
CA-398-30	2.4
CA-394-60LF	2.4

【０１５７】

表７は、調製手順２のドープ手順に従って、Ｅｘ　６、各種酢酸セルロース、またはＥｘ６と各種酢酸セルロースのブレンドのいずれかから作製したドープを示す。特定の酢酸セルロースのみがＥｘ　６とブレンドしてＥＡ：ＥｔＯＨ：水溶媒系でドープを形成することができ、使用した酢酸セルロースはどれもＥＡ：ＥｔＯＨ：水溶媒系でドープを形成することができなかった。Ｅｘ　６はＥＡ：ＥｔＯＨ：水溶媒系で容易にドープを形成した。

【０１５８】

【表７】

EA:EtOH:水(80:13:7)溶媒系を用いたEx 6と各種CAのドープ調製

Ex 6 (重量%)	CA (重量%)	可溶性	粘度 (cP)
100	-	可溶	5830-9000
-	CA-398-3 (100)	不溶	-
-	CA-398-6 (100)	不溶	-
-	CA-398-10(100)	不溶	-
-	CA-398-30 (100)	不溶	-
-	CA-394-60LF (100)	不溶	-
90	CA-398-3 (10)	可溶	4360
70	CA-398-3 (30)	不溶[1]	-
90	CA-398-6 (10)	可溶	5180
70	CA-398-6 (30)	可溶だが混濁	3660
90	CA-398-10 (90)	不溶	-
70	CA-398-10 (30)	不溶	-
90	CA-398-30 (90)	可溶だが混濁	5020
70	CA-398-30 (30)	可溶だが混濁	5200
90	CA-398-60LF (10)	不溶	-
70	CA-398-60LF (30)	不溶	-

[1] 72時間後にもある程度の固形物/ゲルが残った。

【０１５９】

水性混合物

酢酸エチル（１２４．６　ｇ）とメチルセルロース（６．８　ｇ）を、２段ピッチ翼撹拌機（２５０　ｒｐｍ）で分散液が形成されるまで混合して、乳化液の調製に使用する水性混合物を調製する。次に水（１２８０　ｇ）とＴｗｅｅｎ－２８（１３．５　ｇ）を加える。得られた水性混合物を約３０分間撹拌して、溶液を形成する。

【０１６０】

ビーズ形成のための乳化／分散方法

ドープ（６３７．７　ｇ）を水性混合物（１４２４．３　ｇ）に１５　ｍＬ／分の割合で撹拌（２５０ｒｐｍ）しながら（約４５分間）投入する。その後、得られた混合物を２５０　ｒｐｍで撹拌しながら、ＭａｇｉｃＬａｂインライン高剪断ミキサー（６０００　ｒｐｍ）を通して２００　ｍＬ／分で３０分間再循環させた。

【０１６１】

混合物を撹拌しながら水（５６２５ｇ）に２００ｍＬ／ｍｉｎで加え、混合物を室温で２時間撹拌した。混合物を遠心分離（３０００　ｒｐｍ、１５分）してビーズを分離した。ビーズを水で洗浄し、再遠心（３０００　ｒｐｍ、１５分）した（２回）。得られたビーズを１００℃、１５０　ｍｍＨｇのオーブンで乾燥した（１６時間）。

【０１６２】

表８は、Ｅｘ　６と様々な重量パーセンテージの数種の酢酸セルロースのブレンドを用い、手順２で作製したマイクロビーズを提供する。

【０１６３】

【表８】

CA/CAbブレンドからのマイクロビーズの処理結果

Ex番号	CA (重量%)	Ex 6 (重量%)	粒子径[1], μm	<1 μm, %	PSDの山の数[2]	スパン[3]	嵩密度, g/mL
8	CA-398-3 (10)	90	8.24	1.59	二峰性	2.17	0.534
9	CA-398-3 (20)	80	12.7	1.42	三峰性	2.74	0.541
10	CA-398-3 (30)	70	16.4	1.36	四峰性	2.16	データなし
11	CA-398-6 (10)	90	9.48	1.72	三峰性	1.82	0.541
12	CA-398-6 (20)	80	10.3	0.75	三峰性	2.09	0.541
13	CA-398-6 (30)	70	7.59	1.02	二峰性	1.78	0.536
14	CA-398-30 (10)	90	9.64	1.57	二峰性	1.92	0.491
15	CA-398-30 (20)	80	11.7	1.23	三峰性	2.13	0.499
16	CA-398-30 (30)	70	15.6	1.41	三峰性	2.14	0.507

[1]体積基準の粒子径

[2]PSD =粒径分布

[3]スパン＝（D_{90}-D_{10}）/D_{50}

【０１６４】

油取り込み測定

ひまし油の代わりにミネラルオイルを使用し、ＡＳＴＭ　Ｄ２８１「スパチュラによる顔料の吸油に関する標準試験方法」の試験方法を用いて、吸収または油取り込み特性を測定した。鉱油（商品番号ＥＬＬ－ＭＩＯＬ－０１）は、ＭａｋｉｎｇＣｏｓｍｅｔｉｃｓ．ｃｏｍ，　Ｉｎｃ．から入手した。

【０１６５】

鉱油を既知量の未加工粉末に滴下添加し、固形の乾燥ペーストが形成されるまでスパチュラで攪拌する。固形の乾燥ペーストが形成されると、鉱油は吸収されなくなる。油の量が決まったら、次の式で油分を計算する：

ＯＴ　＝　（１００×V_{oil}）／m_{sanple}

ＯＴ：油取り込み（ｍＬ／１００　ｇ）；V_{oil}：使用したオイルの量（ｍＬ）；m_{sanple}：試料の質量（ｇ）

結果を表９に示す。

【０１６６】

【表９】

Ex	種類	M_{sample} (g)	鉱油(g)	$D_{鉱油}$ (g/mL)	V_{oil} (mL)	OT (mL/100g)
7	CAB (球状)	1.5	0.69	0.838	0.823389	55

【０１６７】

本発明の様々な実施形態に関する前述の説明は、例示および説明の目的で提示されたものである。これは、網羅的であること、または本発明を開示された正確な実施形態に限定することを意図するものではない。上記の教示に照らして、多数の修正または変形が可能である。考察された実施形態は、本発明の原理およびその実用化の最良の説明を提供し、それによって当業者が、企図された特定の用途に適した様々な実施形態において、かつ様々な変更を伴って本発明を利用できるようにするために選択され、記述された。そのような修正および変形はすべて、添付の特許請求の範囲が公正、法的、および衡平に権利を有する幅に従って解釈される場合、それによって決定される本発明の範囲内にある。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/US2022/049642

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. C08B3/16 C08B3/18 C08L1/14 G02B1/04 G02B5/30
C08L1/10
ADD.
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C08B C08L G02B

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
EPO-Internal, BIOSIS, COMPENDEX, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	US 2020/299488 A1 (KOBAYASHI KEIKO [JP] ET AL) 24 September 2020 (2020-09-24) cited in the application examples A1-A4; table 1	1-20
Y	KR 2016 0101159 A (KONICA MINOLTA INC [JP]) 24 August 2016 (2016-08-24) paragraphs [0134], [0272], [0336], [0389], [0413] - [0460]; examples 113,116; table 1	1-20
Y	US 9 256 016 B2 (TAMAGAWA MINORI [JP]; KONICA MINOLTA INC [JP]) 9 February 2016 (2016-02-09) examples; table 4	1-20

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☒ See patent family annex.

* Special categories of cited documents :
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance;; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance;; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
14 March 2023	23/03/2023

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Vaccaro, Eleonora

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (April 2005)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No
PCT/US2022/049642

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 2020299488 A1	24-09-2020	CN 111718426 A	29-09-2020
		EP 3711747 A1	23-09-2020
		JP 7149885 B2	07-10-2022
		JP 2020152851 A	24-09-2020
		KR 20200112641 A	05-10-2020
		TW 202100565 A	01-01-2021
		US 2020299488 A1	24-09-2020
KR 20160101159 A	24-08-2016	JP WO2015111435 A1	23-03-2017
		KR 20160101159 A	24-08-2016
		TW 201541161 A	01-11-2015
		WO 2015111435 A1	30-07-2015
US 9256016 B2	09-02-2016	JP 5742930 B2	01-07-2015
		JP WO2012124514 A1	17-07-2014
		KR 20130124558 A	14-11-2013
		US 2013335681 A1	19-12-2013
		WO 2012124514 A1	20-09-2012

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (April 2005)

フロントページの続き

(32)優先日　令和4年5月24日(2022.5.24)
(33)優先権主張国・地域又は機関
米国(US)
(81)指定国・地域　AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,ST,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,CV,CV,CZ,DE,DJ,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IQ,IR,IS,IT,JM,JO,JP,KE,KG,KH,KN,KP,KR,KW,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LU,LY,MA,MD,ME,MG,MK,MN,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,RW,SA,SC,SD,SE,SG,SK,SL,ST,SV,SY,TH,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,WS,ZA,ZM,ZW

（特許庁注：以下のものは登録商標）
１．ＴＷＥＥＮ

マウント・カーメル，バレー・クレスト・ドライブ ２１２
(72)発明者　サイニ，ディーピカー
アメリカ合衆国テネシー州３７６６４，キングスポート，リバーベンド・ドライブ １３５０，アパートメント １０８
(72)発明者　マズムダー，シャルミスタ
アメリカ合衆国テネシー州３７６５９，ジョーンズボロー，マグノリア・リッジ・ドライブ ５０４
(72)発明者　ウィークリー，ギャリー・ケネス
アメリカ合衆国テネシー州３７６６４，キングスポート，アローヘッド・ドライブ ４５５
(72)発明者　ナターレ，マーシー・アン
アメリカ合衆国ペンシルベニア州１７６０３，ランカスター，ウェスト・チェスナット・ストリート ５２４
(72)発明者　ピッツ，ティモシー・アール
アメリカ合衆国テネシー州３７６６４，キングスポート，フォックスファイア・トレイル ５１２１
(72)発明者　ショーフ，グレン・ルイス
アメリカ合衆国テネシー州３７６５９，ジョーンズボロー，ハーモニー・ロード １２９５
(72)発明者　スティーブンズ，マット
アメリカ合衆国テネシー州３７６６０，キングスポート，チッペンデール・スクエア １００
(72)発明者　アリ，ハッサン・アロムギル
ベルギー国 フランダース ２０００ アントワープ，エディス・キールパッド ６，３０１

Ｆターム（参考）　4C090　AA02 AA05 BA25 BA26 BB02 BB12 BB33 BB36 BB52 BD36 BD37 CA31 CA38
4F070　AA02 AB03 AB22 AC12 AC36 AC43 AC72 AE28 DA35 DC07 DC08 DC09